

# 군산연안 다매체 환경에서 과불화화합물(PFASs)의 농도분포 및 수산물 섭취를 통한 인체위해도 평가

이봉민 · 윤세라 · 최민규 · 이성규\* · 이원찬

국립수산과학원 자원환경식품부 어장환경과

## Concentrations and Composition Profiles of Perfluoroalkyl Substances (PFASs) in Coastal Environments from Gunsan, Korea: Assessment of Exposure to PFASs through Seafood Consumption

Bongmin Lee, Se-Ra Yoon, Minkyu Choi, Sunggyu Lee\* and Won-Chan Lee

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

Concentrations of perfluoroalkyl substances (PFASs) were measured in seawater, sediment, and biota collected from Gunsan coast, Korea to investigate their occurrence, distribution, and risk of exposure to humans through seafood consumption. The total concentrations of PFASs in seawater, sediment, and biota ranged from 5.97 to 74.9 ng/L, 0.01 to 13.3 ng/g dry weight, and 0.02 to 5.73 ng/g wet weight, respectively. Predominant PFAS compounds differed across matrices, indicating that the distribution of PFASs in multiple environmental samples is governed by their carbon-chain length. The concentrations of PFASs in seawater were significantly negatively correlated with salinity ( $P < 0.01$ ), suggesting terrestrial input (including land-used PFASs) as the major source of PFAS contamination in coastal environments. The estimated daily intakes (EDIs) of perfluorooctanoic acid (PFOA) and perfluorooctane sulfonate (PFOS) through seafood consumption were 0.05 and 0.06 ng/kg body weight/day, respectively. The EDIs of PFOA and PFOS measured in this study were lower than those proposed by the United States Environmental Protection Agency and Canada guidelines, indicating limited health risk for Korean population from PFASs through consumption of seafood from Gunsan coastal environment.

Keywords: PFASs, Coastal environment, Multimedia distribution, Seafood consumption, Hazard quotient

### 서론

잔류성유기오염물질(persistent organic pollutants, POPs)은 환경 중 잔류성(persistence)이 강하고, 생물 체내에 농축되어(bioaccumulation) 먹이사슬을 통해 분해되지 않고 생물학적 확대(biomagnification)가 일어나며, 생물에 독성(toxicity) 영향을 나타내는 물질로 정의된다. 이들 물질은 대기를 통해 장거리 이동(atmospheric long-range transport)을 하며 전 지구적인 분포를 보이기도 한다. 이에 따라 국제협약인 스톡홀름협약(Stockholm Convention)을 통해 다양한 POPs 물질을 제정하고 관리하고 있다. POPs 물질 중에서 과불화화합물(perfluoroalkyl substances, PFASs)은 탄소와 불소로 이루어진 탄화수

소로서 기본적인 탄화수소의 형태에 수소 대신 불소가 치환된 알킬(alkyl) 화합물질을 총칭한다. PFASs는 소수성(hydrophobic)의 특성을 지니는 탄화수소와 함께 친수성(hydrophilic)을 지니는 작용기가 결합되어 있는 구조를 지니고 있어 물과 기름에 모두 반발하는 특성을 가지고 있다(Park et al., 2020). 이러한 특성 때문에 산업 및 소비자 제품 등에 다양한 용도로 사용되고 있으며, 주로 중합체 첨가물, 방화제, 반도체 세척용제, 계면활성제, 살충제, 윤활제, 페인트, 광택제 등으로 사용되고 있다(Zhang et al., 2019). 2001년에 전 지구적인 생태환경에 축적된 perfluorooctane sulfonate (PFOS)와 perfluorooctanoic acid (PFOA)가 발견된 이래로(Giesy and Kannan, 2001), 다양한 환경 매체에서 PFASs에 대한 연구가 수행되었다. 우리나라

\*Corresponding author: Tel: +82. 51. 720. 2545 Fax: +82. 51. 720. 2515

E-mail address: chemical@korea.kr



This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

<https://doi.org/10.5657/KFAS.2022.0514>

Korean J Fish Aquat Sci 55(5), 514-523, October 2022

Received 5 August 2022; Revised 6 September 2022; Accepted 5 October 2022

저자 직위: 이봉민(연구원), 윤세라(연구원), 최민규(연구원), 이성규(연구사), 이원찬(연구원)

라의 경우, 낙동강(Son et al., 2013), 금강(Lee et al., 2017), 한강(Shin et al., 2009), 안성천과 경안천(Cho et al., 2010), 영산강(Kwon et al., 2015)과 같은 담수 수계를 중심으로 연구가 수행되었다. 해양환경의 경우 우리나라 전국 연안을 대상으로 다매체(해수, 퇴적물, 이매패류) 시료를 대상으로 PFASs (perfluoroalkyl substances)의 오염도를 파악한 연구가 수행되었다(Lee et al., 2020). 또한 특별관리해역인 광양만, 마산만, 부산만에서 PFASs의 오염도와 생물 농축을 평가한 연구(Hung et al., 2020)와 마산만 주상퇴적물을 이용하여 PFASs의 오염 역사를 파악한 연구(Shen et al., 2018)가 보고된 바 있다. 육상에서 다양한 산업적인 용도로 주로 사용되는 PFASs의 특성상 산업단지 및 도시 주변의 하폐수처리장(wastewater treatment plants)을 통해 처리가 완전히 되지 않은 PFASs가 포함된 방류수가 주변 수계로 유입된다(Shin et al., 2009). 결국 수계를 통해 육상에서 기인한 PFASs와 같은 유기오염물질이 연안환경까지 도달하게 되므로 육상 수계와 해양 수계를 잇는 하구를 포함한 연안환경에서의 유기오염물질 연구는 필수적이라 판단된다.

군산 연안은 우리나라의 4대강 중 하나인 금강과 서해가 만나는 지역으로 전형적인 하구의 특성을 나타낸다. 금강을 통해 육상에서 기인한 다양한 오염물질이 포함된 담수가 유입되는 연안 환경을 구성하고 있다. 특히 금강 하류에는 군산자유무역지역과 다수의 산업단지가 위치하고 있어 PFASs를 포함한 다양한 산업용 화학물질이 수계로 유입될 수 있다. 또한 2000년도부터 경제자유구역으로 지정된 군산항과 그 주변 및 새만금지역은 산업 및 관광단지를 조성하는 사업이 활발히 추진되고 있

며, 지속적인 성장으로 인한 환경 오염문제가 대두되고 있다. 본 연구지역인 군산 연안에서의 PAH 혹은 PCBs 연구는 이루어지고 있으나(Lee et al., 2019), PFASs 관련 연구는 거의 없어(Lee et al., 2012; Lee et al., 2019) 체계적인 모니터링이 필요하다.

본 연구에서는 군산 연안에서 해수, 퇴적물을 채취하여 PFASs의 현재 오염도를 조사하고 분포 특성을 파악하였다. 또한 군산 연안에 서식하는 생물 시료(어류, 갑각류, 두족류, 복족류, 이매패류) 분석을 통해 우리나라 국민이 수산물 섭취를 통해 노출되는 PFASs의 양을 산정하여 그 위험도(risk)를 평가하고자 하였다.

## 재료 및 방법

### 정점 및 시료 채취

본 연구는 군산 연안 내측(금강강문 인근)부터 외측 해역까지 1.5 Km 마다 총 12개 정점(GS1-GS12)의 표층 해수와 퇴적물을 대상으로 진행되었으며(Fig. 1), 모든 시료는 2019년 7월에 채취하였다. 해수는 메탄올로 미리 세척된 1 L 폴리프로필렌(polypropylene, PP)병에 채취하였고, 퇴적물(0-4 cm)은 반-빈 그랩 채취기(Van-Veen grab sampler)를 이용하여 미리 세척된 알루미늄 호일 박스(aluminum foil box)에 채취하였으며, 채취한 해수와 퇴적물 시료는 아이스박스에 아이스팩과 함께 넣어 운반하였다. 해수의 경우 분석 전까지 냉동고(-20°C)에서 보관하였으며, 퇴적물의 경우 바로 동결건조하여 분석 전까지 상온에서 보관하였다. 생물시료는 군산시 수협에서 운영

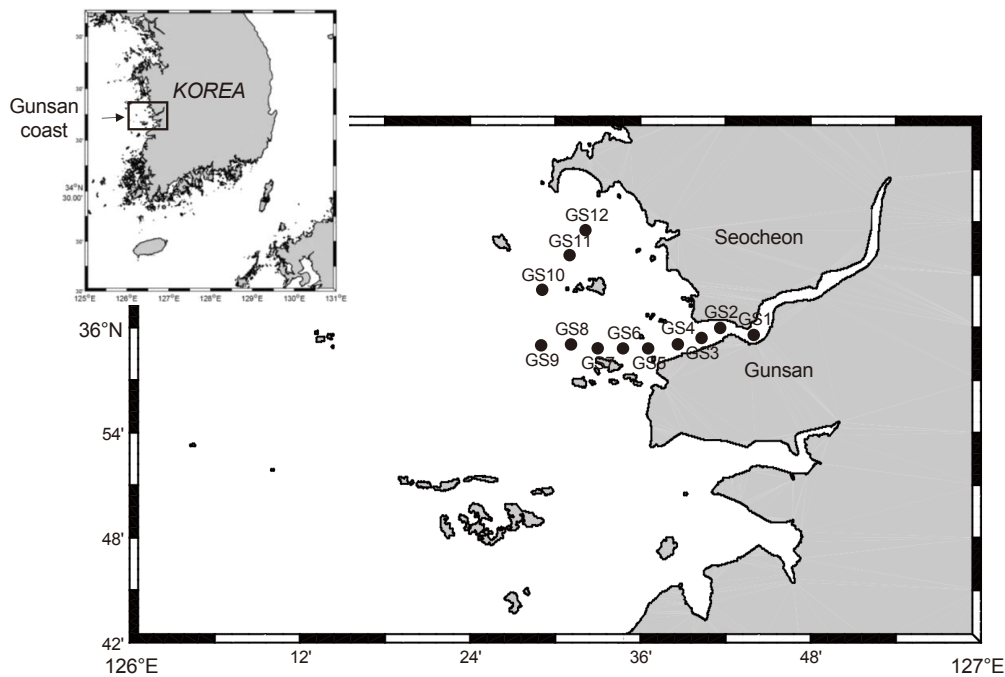


Fig. 1. Sampling stations of seawater and sediments collected from the Gusan coastal environments.

하는 군산시 수산물종합위판장을 통해 어류(fish) 10종[아귀(bastard halibut), 참복(eyespot puffer), 담뱃도다리(frog flounder), 도다리(finespotted flounder), 참돔(red seabream), 참박대(tongue sole), 각시서대(wavyband sole), 가오리(ray)], 갑각류(crustacean) 2종[갯가재(mantis shrimp), 꽃게(swimming crab)], 두족류(Cephalopoda) 3종[갑오징어(colden cuttlefish), 호래기(loligo beka), 낙지(whiparm octopus)], 복족류(Gastropoda) 1종[전복(disk abalone)], 이매패류(shellfish) 2종[바지락(Chinses cyclina), 키조개(comb pen shell)]을 구매하였다. 시료의 대표성을 확보하기 위하여 어류와 두족류는 10마리 이상, 갑각류와 복족류는 20마리 이상, 이매패류는 50마리 이상을 구입하여 아이스박스에 아이스팩과 함께 넣어 운반하였다. 각각의 시료는 풀링(pooling)하여 가식부(edible tissue)를 균질화(homogenization)한 후 보관하였다. 생물시료에 대한 자세한 정보는 Table 1에 나타내었다.

### 표준물질 및 시약

분석대상 PFASs 13종은 PFAC-MXB (Wellington Laboratories Inc., Guelph, ON, Canada)를 사용하였고, perfluorohexanoic acid (PFHxA), perfluoroheptanoic acid (PFHpA),

Table 1. Daily consumption rate of individual seafood samples by sex and general population

Species	Common name	Daily consumption rate (g/day) <sup>a</sup>		
		Male	Female	Total
Fish	Bastard halibut	1.87	0.89	1.38
	Blackmouth angler	0.27	0.41	0.34
	Red seabream	0.41	0.15	0.28
	Sole	0.14	0.12	0.13
	Eyespot puffer	0.15	0.03	0.09
	Finespotted flounder	0.05	0.01	0.03
	Frog flounder	0.05	0.01	0.03
	Ray	0.01	0.03	0.02
	Tongue sole	<sup>b</sup>	-	-
	Wavyband sole	-	-	-
Cephalopoda	Colden cuttlefish	5.79	3.61	4.70
	Whiparm octopus	2.32	1.27	1.80
	Loligo beka	-	0.07	0.03
Crustacean	Swimming crab	1.45	1.46	1.46
	Mantis shrimp	0.04	-	0.02
Shellfish	Chinses cyclina	1.66	0.95	1.31
	Comb pen shell	-	0.01	0.01
Gastropoda	Disk abalone	0.90	0.56	0.73

<sup>a</sup>Data source from Korean National Health and Nutrition Survey (2022). <sup>b</sup>Not available.

PFOA, perfluorononanoic acid (PFNA), perfluorodecanoic acid (PFDA), perfluoroundecanoic acid (PFUnDA), perfluorododecanoic acid (PFDoDA), perfluorotridecanoic acid (PFTrDA), perfluorotetradecanoic acid (PFTeDA)을 포함한 perfluoroalkyl carboxyl acids (PFCAs) 9종과 perfluorobutane sulfonate (PFBS), perfluorohexane sulfonate (PFHS), PFOS, perfluorodecane sulfonate (PFDS)을 포함한 perfluoroalkane sulfonates (PFASs) 4종으로 이루어져 있다.

내부표준물질(internal standards, ISTD)은 MPFAC-MXA (Wellington Laboratories Inc., ON, Canada)를 사용하였으며, 7종의 PFASs (<sup>13</sup>C<sub>2</sub>-PFHxA, <sup>13</sup>C<sub>4</sub>-PFOA, <sup>13</sup>C<sub>5</sub>-PFNA, <sup>13</sup>C<sub>2</sub>-PFDA, <sup>13</sup>C<sub>2</sub>-PFUnDA, <sup>18</sup>O<sub>2</sub>-PFHS, <sup>13</sup>C<sub>4</sub>-PFOS)가 포함되어 있다. 실린지용 내부표준물질(Syringe-ISTD)은 동일사의 M8P-FOA (<sup>13</sup>C<sub>8</sub>-PFOA), M8PFOS (<sup>13</sup>C<sub>8</sub>-PFOS)를 사용하였다. 메탄올(Methanol, MeOH, Center Valley, PA, USA)과 methyl tert-butyl ether (MTBE)은 HPLC-grade의 J.T. Baker (Center Valley, PA, USA) 제품을 사용하였다. Tetrabutylammonium hydrogen sulfate (TBAHS; 97%), 수산화나트륨(sodium hydroxide, NaOH; >97%), 염산(hydrochloric acid, HCl)은 Sigma-Aldrich (St. Louis, MO, USA) 제품을 사용하였다. 탄산나트륨(sodium carbonate, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)은 Kanto (Tokyo, Japan) 제품을 사용하였다. Oasis HLB solid phase extraction (SPE) 카트리지(6 mL, 150 mg)는 Waters (Milford, MA, USA) 제품을 사용하였으며, Envi-Carb SPE 카트리지(100 mg)는 Supelco (Bellefonte, PA, USA) 제품을 사용하였다.

### 전처리 및 기기분석

해수(250 mL)는 GF/F (47 mm, 0.7 µm)로 필터한 후, MeOH로 세척한 PP 재질의 채수병에 보관하였다. 각 시료에 ISTD (5 ng)를 첨가한 후 Oasis HLB SPE 카트리지를 MeOH (8 mL), Water (8 mL) 순으로 활성화 후, 시료를 로딩(loading)하고 1 시간동안 카트리지를 펌프로 건조시켰다. 건조된 카트리지에 MeOH (12 mL)를 이용하여 용출하고 용출된 시료를 질소를 이용하여 1 mL까지 농축하고 실린지용 ISTD (5 ng)를 첨가한 후 nylon filter (0.22 µm)를 사용하여 필터하여 액체크로마토그래피-삼중질량분석기(liquid chromatography-tandem mass spectrometer, LC-MS/MS; ExionLC-API 4500; AB Sciex, Toronto, ON, Canada)로 정량분석을 수행하였다.

퇴적물(건중량 5 g)은 칭량하여 미리 세척된 PP 튜브(50 mL)에 넣고 ISTD (5 ng)를 첨가한 후 MeOH (15 mL)을 넣고 수평형 교반기(250 rpm, 30 min)와 초음파 추출기(sonication, 30 min)를 이용하여 추출하였다. 추출 후 원심분리기(centrifugation, 3000 rpm, 5 min)를 이용하여 원심분리 후 상등액을 PP 튜브(50 mL)에 모았다. 위 추출과정을 2회반복하여 추출을 진행하였다. 추출된 시료는 질소 농축기를 이용하여 1 mL가 될 때까지 농축하였다. 농축된 시료는 Envi-Carb SPE (Merk &



Co, Rahway, NJ, USA) 카트리지를 이용하여 색소를 제거하였고, 실린지용 ISTD (5 ng)를 첨가한 후 해수와 동일하게 nylon filter를 사용하여 필터하여 LC-MS/MS로 정량분석을 수행하였다.

생물시료의 경우 가식부(2 g wet weight)를 이온쌍추출법(Ion-pairing extraction)을 이용하여 전처리하였다. ISTD (5 ng)를 첨가한 후 초순수(2 mL), 0.5 M TBAHS (pH 10, 2 mL), 0.25 M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> (1 mL), MTBE (5 mL)와 함께 균질화 한 후 Mechanical Shaking (250 rpm, 30 min)하여 원심분리(3000 rpm, 5 min) 후 상등액을 50 mL PP tube에 분취하여 추출을 진행하였다. 추출 후 MTBE (5 mL)를 첨가하여 2회 반복하여 추출하고, 질소 농축기를 이용하여 농축하고 메탄올을 이용하여 1 mL로 맞추었다. 그 후 다른 매질과 동일하게 실린지용 ISTD (5 ng)를 첨가한 후 Nylon filter를 사용하여 필터하여 LC-MS/MS로 정량분석을 수행하였다.

PFASs의 정량분석에 사용한 LC-MS/MS는 Zorbax Eclipse XDB-C18 (1.6×150 mm, 3.5 mm) 컬럼을 사용하여 물질을 분리하였다. 이동상(mobile phase) A는 2 mM ammonium acetate in Water, 이동상 B는 MeOH를 사용하였으며, 유속(flow rate)은 300 µL/min였다. 시료 주입량(injection volume)은 10 µL였다. MS/MS의 이온화 방법으로는 ESI (electrospray ionization) negative방법으로 진행되었다.

### 정도 관리 및 자료처리 방법

LC-MS/MS를 이용한 시료 분석 전에 MeOH를 충분히 분석하여 기기 상의 배경 오염(background contamination)을 확인 및 제거하고 실제 시료를 분석하였다. 또한 10개의 시료를 분석할 때마다 중간 농도의 검량용액(calibration solution)을 분석하여 기기상태를 점검하였다. 실제 시료 전처리에 포함되어 분석된 방법 바탕 시료(method blank sample)에서는 PFASs가 검출되지 않았다. ISTD 7종의 평균 회수율은 모든 시료에 대하여 77.4±15.5%로 나타나 신뢰할만한 결과를 얻을 수 있었다. 각 매체에서 분석된 PFASs의 농도와 각 정점의 수온, 염분 등과의 자료는 SPSS 18.0K를 사용하여 통계 분석을 수행하였다. 각 인자 간 상관성 여부는 Spearman's rank correlation을 이용하여 분석하였으며, 유의성 여부는 P<0.05일 때 유의성이 있다고 판단하였다.

## 결과 및 고찰

### 매체별/정점별 PFASs 농도

군산 연안 환경 내 매체별 PFASs의 농도를 Table 2에 정리하였다. 분석된 모든 매체(해수, 퇴적물, 생물)에서 PFASs가 검출되었으며, 이는 곧 육상환경에서 주로 사용된 PFASs가 군산 연안 환경에 만연하게 존재하는 것을 확인할 수 있었다. 해수 중 총 PFASs 농도(∑PFAS)는 5.97-74.9 (평균, 40.1) ng/

L의 범위로 나타났으며, 평균적으로 PFCAs 계열의 PFASs의 총 농도(∑PFCAs, 25.0 ng/L)가 PFSA 계열의 PFASs의 총 농도(∑PFSA, 12.1 ng/L)보다 높게 나타났다. 개별 PFASs별로 보면, PFOA (20.4 ng/L)가 가장 높은 농도로 나타났으며, 그 다음으로 PFHS (12.6 ng/L), PFHxA (2.83 ng/L), PFBS (1.48 ng/L), PFOS (1.03 ng/L) 순으로 높게 나타났다. 이러한 결과는 이전에 국내에서 분석된 결과와 유사한 경향을 나타내며(Hong et al., 2015; Lee et al., 2020), 과거에 주로 사용된 PFOA가 환경 중 많이 잔류하면서 나타나는 결과로 보여진다. 퇴적물 중 ∑PFAS는 0.01-13.3 (평균, 3.99) ng/g dry weight의 범위로 나타났으며, 해수와 마찬가지로 ∑PFCAs (3.54 ng/g dry weight)가 ∑PFSA (0.45 ng/g dry weight)보다 높은 농도로 나타났다. 개별 PFASs별로 보면, PFHxA (평균, 2.55 ng/g dry weight)가 가장 높게 나타났다. 퇴적물 중 PFHxA의 농도는 최내측 정점(GS1)에서 가장 높은 농도를 보였다(11.7 ng/g). 이러한 결과는 금강 하구를 통해 갑작스런 담수 유입의 결과로 보여진다. 생물 시료 18종에 대한 ∑PFAS는 0.02-5.73 (평균, 1.98) ng/g wet weight의 범위로 나타났다. 비생물매체와 마찬가지로 ∑PFCAs (1.71 ng/g wet weight)가 ∑PFSA (0.47 ng/g wet weight)보다 높은 농도로 나타났다. 개별 PFASs별로 보면 PFTrDA (평균, 0.61 ng/g wet weight), PFOS (0.44 ng/g wet weight), PFUnDA (0.39 ng/g wet weight)순으로 높은 농도로 나타났다. 생물 시료의 종별 ∑PFAS는 갑각류(0.63 ng/g wet weight)에서 가장 높은 농도를 보이고 있었으며, 그 다음으로 어류(0.61 ng/g wet weight), 두족류(0.30 ng/g wet weight), 이매패류(0.03 ng/g wet weight) 순으로 나타났으며, 이는 생물종류에 따라 흡수 및 농축되는 정도의 차이로 판단된다.

조사 정점별 PFASs의 해수 및 퇴적물에서의 총 농도와 각 정점에서 측정된 수계의 염분 자료를 Fig. 2에 나타내었다. 해수 시료의 경우 조사 정점별 ∑PFAS가 가장 높은 정점은 GS4 (75 ng/L)로 나타났으며, 그 다음으로는 GS2 (68 ng/L), GS5 (67 ng/L), GS3 (59 ng/L), GS1 (55 ng/L) 순으로 나타났다. 전반적으로 육지와 가까운 정점(GS1-GS5)에서 먼 정점(GS6-GS12)에 비해 높은 ∑PFAS를 나타내고 있었다. 또한 해수 중 ∑PFAS가 높은 정점에서는 낮은 염분(salinity)을 보이고 있었다(spearman correlation, P<0.01). 이러한 결과는 담수 유입이 높아 해수 중 염분이 낮아지는 지역일수록 PFASs의 농도가 높아짐을 의미하며, 이는 곧 군산 연안의 PFASs의 주요 오염원은 육상에서부터 기인한 오염물질이 담수 수계를 통해 해양으로 유입되고 있음을 의미한다. 퇴적물 중 ∑PFAS가 가장 높은 정점은 GS1 (13 ng/g dry weight)으로 나타났으며, 그 다음으로는 GS7 (7.8 ng/g dry weight), GS10 (6.7 ng/g dry weight)순으로 나타났다.

군산 연안에서 채취된 해수시료에서 검출된 PFASs 농도의 물질별 상관성을 Spearman's correlation을 통해 살펴본 결과, PFHxA, PFHpA, PFOA, PFNA, PFBS, PFHS, PFOS간 유의

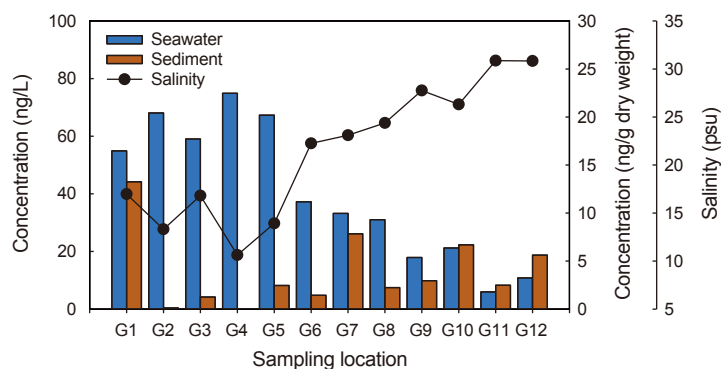


Fig. 2. Spatial distribution of PFASs in seawater and sediments from Gunsan coastal environments. PFASs, Perfluoroalkyl substances.

미한 상관성( $r=0.720-0.993$ ,  $P<0.01$ )을 나타내었다. 퇴적물의 경우 해수에 비해 상대적으로 PFASs 물질 간 상관성이 낮았으나, PFHS ( $r=0.622-0.713$ ,  $P<0.05$ )와 PFOS ( $r=0.676-0.799$ ,  $P<0.05$ )의 경우 대부분의 PFASs와 상관성이 있는 것으로 나타났다. 생물시료의 경우 대부분 탄소사슬이 긴 PFASs (PFDA, PFUnDA, PFDoDA, PFTTrDA, PFTeDA)에서 유의미한 상관

성( $r=0.489-0.946$ ,  $P<0.05$ )을 나타내었다. 이러한 결과는 군산 연안 내 해당 PFASs는 각 매체별 분포에 있어 유사한 오염원을 가지며, 환경적 거동이 유사함을 의미한다.

#### 국내 · 외 농도 수준과 비교

본 연구에서 측정된 군산 연안의 매체(해수, 퇴적물, 생물)별

Table 2. Summary of concentrations of perfluoroalkyl substances (PFASs) in seawater (ng/L), sediment (ng/g dry weight), and biota (ng/g wet weight) samples collected from Gunsan coastal environments of Korea

	Seawater (N=12)			Sediment (N=11)			Biota (N=18)		
	DF <sup>a</sup> (%)	Ave <sup>b</sup> ±SD <sup>c</sup>	Min-Max	DF (%)	Ave±SD	Min-Max	DF (%)	Ave±SD	Min-Max
PFHxA	100	2.83±1.61	0.49-4.95	63.6	2.55±3.63	<LOQ <sup>d</sup> -11.7	0.00	- <sup>e</sup>	-
PFHpA	100	0.97±0.41	0.29-1.70	54.6	0.01±0.02	<LOQ-0.04	5.56	-	-
PFOA	100	20.4±11.5	3.46-36.5	63.6	0.20±0.20	<LOQ-0.62	72.2	0.19±0.50	<LOQ-2.18
PFNA	100	0.60±0.29	0.14-1.01	90.9	0.05±0.03	<LOQ-0.12	94.4	0.17±0.19	<LOQ-0.75
PFDA	100	0.19±0.16	0.05-0.53	63.6	0.08±0.09	<LOQ-0.28	100	0.11±0.10	<LOQ-0.38
PFUnDA	75.0	0.03±0.05	<LOQ-0.19	91.9	0.42±0.52	<LOQ-1.31	94.4	0.39±0.33	<LOQ-1.12
PFDoDA	41.7	0.01±0.01	<LOQ-0.02	81.2	0.14±0.13	<LOQ-0.36	66.7	0.11±0.13	<LOQ-0.44
PFTTrDA	25.0	0.01±0.02	<LOQ-0.09	81.2	0.05±0.04	<LOQ-0.12	100	0.61±0.55	<LOQ-1.83
PFTeDA	33.3	0.01±0.02	<LOQ-0.06	54.6	0.03±0.03	<LOQ-0.07	77.8	0.06±0.06	<LOQ-0.18
PFBS	100	1.48±0.77	0.26-2.81	72.7	0.03±0.03	<LOQ-0.10	5.56	0.05±0.21	<LOQ-0.88
PFHS	100	12.6±8.97	0.57-26.3	81.8	0.20±0.20	<LOQ-0.67	16.7	0.01±0.04	<LOQ-0.15
PFOS	91.7	1.03±0.62	<LOQ-2.16	72.7	0.16±0.16	<LOQ-0.56	94.4	0.44±0.43	<LOQ-1.39
PFDS	100	0.05±0.06	0.01-0.22	72.7	0.07±0.07	<LOQ-0.19	5.56	-	-
ΣPFCA <sup>f</sup>	100	25.0±13.8	4.51-44.1	100	3.54±3.92	0.01-13.0	100	1.71±1.49	<LOQ-4.75
ΣPFSA <sup>g</sup>	100	12.1±10.3	1.46-30.8	90.9	0.45±0.42	<LOQ-1.21	94.4	0.47±0.45	<LOQ-1.46
ΣPFAS <sup>h</sup>	100	40.1±24.0	5.97-74.9	100	3.99±4.02	0.01-13.3	100	1.98±1.71	0.02-5.73

<sup>a</sup>Detection frequency. <sup>b</sup>Average. <sup>c</sup>Standard deviation. <sup>d</sup>Below than limit of quantification. <sup>e</sup>Not available. <sup>f</sup>Sum of 9 PFCA compounds.

<sup>g</sup>Sum of 4 PFSA compounds. <sup>h</sup>Sum of 13 PFAS compounds. PFHxA, Perfluorohexanoic acid; PFHpA, Perfluoroheptanoic acid; PFOA, Perfluorooctanoic acid; PFNA, Perfluorononanoic acid; PFDA, Perfluorodecanoic acid; PFUnDA, Perfluoroundecanoic acid; PFDoDA, Perfluorododecanoic acid; PFTTrDA, Perfluorotridecanoic acid; PFTeDA, Perfluorotetradecanoic acid; PFBS, Perfluorobutane sulfonate; PFHS, Perfluorohexane sulfonate; PFOS, Perfluorooctane sulfonate; PFDS, Perfluorodecane sulfonate; PFCA, Perfluoroalkyl carboxyl acid; PFSA, Perfluoroalkane sulfonates.

PFOA와 PFOS의 농도를 국내·외에서 조사된 농도를 Table 3에 정리하여 비교하였다. 군산 연안의 해수 중 PFOA의 농도(20.4 ng/L)는 국내에서 조사된 한강(16.2 ng/L; Shin et al., 2009), 안성천, 경안천(8.3–14.5 ng/L; Cho et al., 2010)과 영산강(8.2 ng/L; Kwon et al., 2015)에서의 결과와 미국에서 조사된 Rhine river (11.4 ng/L; Möller et al., 2010)의 결과와 유

사한 범위 내에 존재하고 있었다. 그러나 낙동강(41.4–65.8 ng/L; Son et al., 2013)에서의 결과보다 약 2배이상 낮은 농도로 나타났다. 본 연구에서 측정된 군산 연안의 PFOS 농도(1.03 ng/L)는 중국 Bohai Sea에서 11월에 측정된 농도(0.34 ng/L; Chen et al., 2016)보다는 높게 나타났지만, 동일 해역 7월 조사결과(7.74 ng/L)와, 국내의 낙동강(32.9–59.8 ng/L; Son et

Table 3. Comparisons of PFOA and PFOS concentrations in seawater, sediment, and seafood from Gunsan coastal environments of Korea and those reported for other studies

Location, Country	Year <sup>a</sup>	N <sup>b</sup>	PFOA	PFOS	Reference
<b>Water (ng/L)</b>					
Han River, Korea	2007	16	16.2	10.3	Shin et al. (2009)
River Rhine watershed, USA	2008	75	11.4	5.66	Möller et al. (2010)
Nakdong River, Korea (February)	2009	29	65.8	59.8	Son et al. (2013)
Nakdong River, Korea (August)	2009	29	41.4	32.9	Son et al. (2013)
Anseong Stream, Korea	2009	5	14.5	43.4	Cho et al. (2010)
Gyeonan Stream, Korea	2009	5	8.3	15.5	Cho et al. (2010)
Yeongsan River, Korea	2013	18	8.2	43.8	Kwon et al. (2015)
Bohai Sea, China (July)	2013	27	9.9	7.74	Chen et al. (2016)
Bohai Sea, China (November)	2013	28	3.62	0.34	Chen et al. (2016)
Gunsan coast, Korea	2018	11	20.4	1.03	This study
<b>Sediment (ng/g dry weight)</b>					
Bohai Sea, China	2011-2012	29	0.06	0.54	Gao et al. (2014)
Yellow Sea, China	2011-2012	66	0.19	0.09	Gao et al. (2014)
East Sea, China	2011-2012	71	0.18	0.1	Gao et al. (2014)
Charleston, USA	2012	36	0.42	1.52	White et al. (2015)
Bohai Sea, China (July)	2013	13	0.29	0.11	Chen et al. (2016)
Bohai Sea, China (November)	2013	13	0.3	0.06	Chen et al. (2016)
Gunsan coast, Korea	2018	11	0.21	0.16	This study
<b>Seafood (ng/g wet weight)</b>					
Lake Vattern, Sweden	2001	5	0.09	8.08	Berger et al. (2009)
Baltic Sea	2001	5	0.09	1.68	Berger et al. (2009)
Taihu Lake, China	2012	122	3.34	46.5	Fang et al. (2014)
Nespeky, the Czech Republic	2012	6	- <sup>c</sup>	2.9	Cerveny et al. (2016)
Elbe River, the Czech Republic	2012	6	-	8.8	Cerveny et al. (2016)
Dluhonice, the Czech Republic	2012	6	-	27.3	Cerveny et al. (2016)
Predmerice, the Czech Republic	2012	6	-	17.1	Cerveny et al. (2016)
Usti nad Labem, the Czech Republic	2012	6	-	38.3	Cerveny et al. (2016)
Topelec, the Czech Republic	2012	6	-	3.2	Cerveny et al. (2016)
Mindu Dam, Tanzania	2012-2016	1	0.71	14.9	Groffen et al. (2021)
Ngerengerer River, Tanzania	2012-2016	6	0.28	4.24	Groffen et al. (2021)
Kikundi River, Tanzania	2012-2016	2	0.85	4.55	Groffen et al. (2021)
Tzugi River, Tanzania	2012-2016	1	2.8	-	Groffen et al. (2021)
Gunsan coast, Korea	2018	16	0.2	0.43	This study

<sup>a</sup>Sampling Year. <sup>b</sup>Number of analyzed sample. <sup>c</sup>Not available. PFOA, Perfluorooctanoic acid; PFOS, Perfluorooctane sulfonate.

al., 2013), 한강(10.3 ng/L; Shin et al., 2009), 안성천, 경안천 (15.5–43.4 ng/L; Cho et al., 2010), 미국의 Rhine river (5.66 ng/L; Möller et al., 2010)에서 조사된 결과보다 낮게 나타났다.

본 연구에서 측정된 군산 연안 퇴적물의 PFOA (0.20 ng/g dry weight)는 중국의 Bohai Sea (0.06 ng/g dry weight; Gao et al., 2014), Yellow Sea (0.19 ng/g dry weight; Gao et al., 2014)와 동중국해(0.18 ng/g dry weight; Gao et al., 2014)보다는 높거나 유사하게 나타났으며, 미국의 Charleston 지역의 수계 (0.42 ng/g dry weight; White et al., 2015), 중국의 Bohai Sea (0.29–0.30 ng/g dry weight; Chen et al., 2016)보다는 낮게 나타났다. 군산 연안 퇴적물의 PFOS (0.16 ng/g dry weight)는 중국의 Yellow Sea와 동중국해(0.1–0.9 ng/g dry weight; Gao et al., 2014), 중국의 7월 Bohai Sea (0.11 ng/g dry weight; Chen et al., 2016)보다는 높게 나타났으며, 미국의 Charleston 지역의 수계(1.52 ng/g dry weight; White et al., 2015)와 중국의 Bohai Sea (0.54 ng/g dry weight; Gao et al., 2014)보다는 낮게 나타났다.

본 연구에서 조사된 수산생물의 PFOA (0.19 ng/g wet weight)는 중국의 Taihu Lake (3.34 ng/g wet weight; Fang et al., 2014), 탄자니아의 Mindu Dam, Ngerengerer river, Kikundi river와 Tzugi River (0.28–2.80 ng/g wet weight; Groffen et al., 2021)보다는 낮게 나타났으며, 체코의 Nespeky, Elbe river, Dluhonice, Predmerice, Usti nad Labem과 Topelec (Cerveny et al., 2016)은 불검출로 나타났다. 군산의 수산생물의 PFOS (0.43 ng/g wet weight)는 중국의 Taihu Lake (46.5 ng/g wet weight; Fang et al., 2014), 스웨덴의 Vattern Lake, Baltic Sea (1.68–8.08 ng/g wet weight; Berger et al., 2009), 체코의 Nespeky, Elbe River, Dluhonice, Predmerice, Usti nad Labem, Topelec (2.9–38.3 ng/g wet weight; Cerveny et al., 2016), 탄자니아의 Mindu Dam, Ngerengerer River와 Kikundi River (4.24–14.9 ng/g wet weight; Groffen et al., 2021) 보다 낮게 나타났다. 이러한 결과 값은 각 지역마다 환경적인 차이가 있는 것으로 판단된다.

### 다매체 PFASs의 분포 특성

군산 연안 환경에서 채취된 매체별(해수, 퇴적물, 생물) 시료에서의 PFASs의 조성비를 Fig. 3에 나타내었다. 전체적으로 보았을 때, 각 매체에서 PFASs의 조성비는 다르게 나타났으며, 이는 매체별 PFASs의 농축 특성이 다르기 때문인 것으로 판단된다. 이전에 다매체에서 PFASs를 조사한 다른 연구에서도 유사한 축적 경향을 보여주었다(Lee et al., 2020). PFASs에 대한 PFCAs와 PFASs의 기여율을 보면, 모든 매체에서 PFCAs (해수, 66%; 퇴적물, 84%; 생물, 73%)가 PFASs (해수, 34%; 퇴적물, 16%; 생물, 27%)보다 높은 기여율을 보였다. 이러한 결과는 대표적인 PFASs의 화합물인 PFOS의 국제적인 규제에 의한 효과인 것으로 판단된다. 이전의 우리나라 연안에서의 다매체

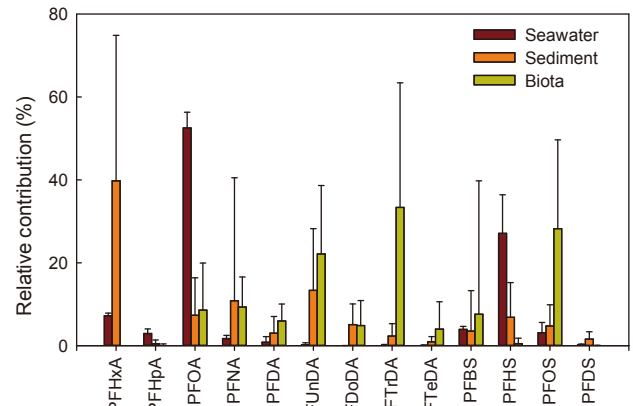


Fig. 3. Relative contributions of perfluoroalkyl substances (PFASs) in seawater, sediment, and biota samples collected from Gusan coastal environments. Whiskers on the bars represent standard deviation for each PFAS compound.

연구결과에서도 유사한 결과를 나타내었으며(Lee et al., 2020), 주상퇴적물을 이용한 마산만 내 PFASs의 오염 역사를 조사한 연구에서도 최근(상층부) PFASs의 기여도에서 PFASs의 저감(phase-out)효과를 확인한 바 있다(Shen et al., 2018).

해수시료에서는 PFOA (평균±표준편차, 53±3.8%)가 가장 높은 기여율을 보였다. 해수의 경우 현재의 오염상태를 보여주는 매체로서 PFOA가 현재 군산 연안으로 유입되는 주요한 PFAS 화합물이라는 것을 의미한다. PFOA 다음으로 PFHS (27±9.3%), PFHxA (7.2±0.6%) 순으로 높은 기여율을 보이는 것으로 나타났다. 다른 PFASs의 경우 5% 이내의 기여율을 보였으며, PFOS는 해수 중에서 3.1%의 낮은 기여율을 보였다. 상대적으로 짧은 탄소사슬(carbon chain)의 PFASs인 PFHS가 PFOA 다음으로 높은 기여율을 보이고 있었다. 이는 곧 생태계 미치는 악영향이 높은 PFOS의 전 세계적인 규제 효과로 인하여 우리나라 서부지역의 산업계에서도 PFOS 대신 PFHS를 주로 사용하는 것으로 판단된다. 국내뿐만 아니라 국외의 다른 지역에서도 유사한 결과를 보고한 바 있다(Zhou et al., 2013). 퇴적물에서는 PFHxA (평균±표준편차, 37±35%)가 가장 우세하게 나타났으며, PFUnDA (19±25%), PFNA (10±28%), PFOA (7.1±8.7%), PFHS (6.3±8.2%) 순으로 높은 기여율을 보였다. 이외의 PFASs는 퇴적물 내에서 5% 미만의 기여율을 보였다. 일반적으로 PFASs의 탄소사슬 길이가 길어질수록 입자와 흡착하려는 성질( $K_{oc}$ )이 강하기 때문에 퇴적물에서는 주로 긴 탄소사슬 길이의 PFASs가 주로 존재한다. 그러나 본 연구에서는 6개의 탄소사슬을 갖는 PFHxA가 가장 높은 기여율을 보였는데 이는 육지와 상대적으로 가까운 정점인 GS1 (89%), GS3 (73%), GS7 (78%)에서 높은 기여율을 보였기 때문이다.

수산생물에서는 긴 탄소 사슬의 PFASs인 PFTTrDA, PFUnDA



Table 4. EDI of PFASs through seafood consumption for male, female, and general population in Korea and comparison of EDIs of PFOA and PFOS with guidelines

	EDI <sup>a</sup> (ng/kg bw/day)			Rfd <sup>b</sup> (ng/kg bw/day)	HQ <sup>c</sup>		
	Male	Female	Total		Male	Female	Total
PFOA	0.05	0.06	0.05	20.0	2.00×10 <sup>-3</sup>	3.00×10 <sup>-3</sup>	3.00×10 <sup>-3</sup>
PFOS	0.07	0.05	0.06	30.0	2.00×10 <sup>-3</sup>	2.00×10 <sup>-3</sup>	2.00×10 <sup>-3</sup>
ΣPFCA	0.50	0.43	0.47	- <sup>d</sup>	-	-	-
ΣPFSA	0.07	0.05	0.06	-	-	-	-
ΣPFAS	0.57	0.48	0.53	8.00 <sup>e</sup>	0.07	0.06	0.07

<sup>a</sup>Estimated daily intake. <sup>b</sup>Reference dose by US EPA (2016a, 2016b). <sup>c</sup>Hazard Quotient. <sup>d</sup>Not available. <sup>e</sup>TDI value by ESFA (2018). PFOA, perfluorooctanoic acid; PFOS, perfluorooctane sulfonate; PFCA, Perfluoroalkyl carboxyl acids; PFSA, Perfluoroalkane sulfonates; PFAS, Perfluoroalkyl substances.

와 생물 체 내의 단백질에 강하게 축적되는 특성을 갖는 PFOS가 전체 PFASs 대비 70% 이상으로 우세한 기여율을 보였다. 그 다음으로는 PFNA (8.6%), PFOA (7.4%), PFDA (5.2%) 순으로 높은 기여율을 보였으며, 나머지 PFASs는 5% 미만의 기여율로 나타났다. 이전의 연구에서도 우리나라 연안의 생물체 (이매패류, 고래류 등) 내에서 긴 탄소사슬을 갖는 PFTDA나 PFUnDA가 가장 우세하게 축적되어 있는 결과를 보고한 바 있다(Moon et al., 2010; Lee et al., 2020).

수산물 섭취를 통한 인체위해도 평가

군산 연안에 서식하고 있는 수산물 섭취를 통한 PFASs의 인체위해도를 평가하기 위하여 주요 PFASs인 PFOA와 PFOS, ΣPFCA, ΣPFSA, ΣPFAS의 일일노출량(estimated daily intake, EDI)과 물질별 일일섭취허용량, 노출위험quotient(hazard quotient, HQ)을 계산하여 Table 4에 정리하였다. 각 물질별 EDI의 경우 식(1)을 사용하여 단위 체중당 EDI를 산정하였다.

$$EDI (ng/kg bw/day) = \frac{C_{PFAS} \times D_{FC}}{BW} \dots\dots\dots (1)$$

이때, C<sub>PFAS</sub>는 각 수산물의 가식부에서 측정된 PFAS의 농도 (ng/g wet weight)이며, D<sub>FC</sub>는 수산물의 일일 섭취량(g/day), BW는 우리나라 국민(남성, 여성, 평균)의 평균 체중(kg)을 나타낸다(KNHANES, 2022). 수산물의 일일 섭취량과 평균 체중의 경우 국민건강영양조사를 통해 파악하였다. 각 수산물에 대한 일일 섭취량은 Table 1에 나타내었으며, 우리나라 국민의 평균 체중은 66.0 kg (남성, 73.8 kg; 여성, 58.3 kg)을 사용하였다 (KOSIS, 2022). 전체적으로 남성(ΣPFAS, 0.57 ng/kg bw/day)이 여성(0.48 ng/kg bw/day)에 비해 더 높은 EDI를 갖는 것으로 계산되었다. 이는 남성의 더 높은 평균 체중에도 불구하고 수산물섭취량이 더 높기 때문인 것으로 판단된다. 우리나라 평균 국민의 수산물섭취를 통한 PFOA, PFOS, ΣPFAS의 EDI는 0.05, 0.06, 0.53 ng/kg bw/day로 나타났다. 계산된 EDI의 인체위해도를 평가하기 위하여 미국 환경청(US EPA, 2016a, 2016b)에

서 제시한 PFOA와 PFOS에 대한 참고섭취량(reference dose, Rfd)과 캐나다에서 제시한 PFASs의 일일 섭취허용량(tolerable daily intake, TDI)과 비교를 하여 HQ를 식(2)를 통하여 계산하였다. 이때 PFOA와 PFOS에 대한 Rfd 및 ΣPFAS에 대한 TDI값은 Table 4에 나타내었다.

$$HQ = \frac{EDI}{Rfd} \dots\dots\dots (2)$$

PFOA와 PFOS의 HQ는 3.0×10<sup>-3</sup>, 2.0×10<sup>-3</sup>으로 나타나 군산 연안에 서식하는 수산물 섭취를 통한 인체위해도는 매우 낮을 것으로 예상된다. 그러나 ΣPFAS의 경우 HQ가 0.07로 나타났다. 이는 수산물섭취만으로도 PFASs의 TDI 7%에 해당하는 양이 인체에 노출된다는 의미로 다양한 PFASs의 인체노출 경로를 고려해 보았을 때 인체위해도는 낮지만 연안환경에서의 PFASs에 대한 지속적인 모니터링이 필요하다고 판단된다.

사 사

이 논문은 2022년도 국립수산물과학원 수산시험연구사업 (R2022061)의 지원으로 수행된 연구입니다.

References

Berger U, Glynn A, Holmström KE, Berglund M, Ankarberg EH and Törnkvist A. 2009. Fish consumption as a source of human exposure to perfluorinated alkyl substances in Sweden-Analysis of edible fish from Lake Vättern and the Baltic Sea. Chemosphere 76, 799-804. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2009.04.044>.

Cervený D, Grabic R, Fedorova G, Grabicova K, Turek J, Kodes V, Golovko O, Zlabek V and Randak T. 2016. Perfluoroalkyl substances in aquatic environment-comparison of fish and passive sampling approaches. Environ Res 144, 92-98. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2015.11.010>.

Cho C, Lee DH, Lee BC, Kim SJ, Choi K and Yoon J. 2010.



- Residual concentrations of perfluorinated compounds in water samples of Anseong and Gyeong streams and their spectroscopic characteristics. *J Korean Soc Environ Anal* 13, 226-236.
- Chen H, Sun R, Zhang C, Han J, Wang X, Han G and He X. 2016. Occurrence, spatial and temporal distributions of perfluoroalkyl substances in wastewater, seawater and sediment from Bohai Sea, China. *Environ Pollut* 219, 389-398. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2016.05.017>.
- Fang S, Zhao S, Zhang Y, Zhong W and Zhu L. 2014. Distribution of perfluoroalkyl substances (PFASs) with isomer analysis among the tissues of aquatic organisms in Taihu Lake, China. *Environ Pollut* 193, 224-232. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2014.07.006>.
- Gao Y, Fu J, Zeng L, Li A, Li H, Zhu N, Liy R, Liu A, Wang Y and Jiang G. 2014. Occurrence and fate of perfluoroalkyl substances in marine sediments from the Chinese Bohai Sea, Yellow Sea, and East China Sea. *Environ Pollut* 194, 60-68. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2014.07.018>.
- Giesy JP and Kannan K. 2001. Global distribution of perfluorooctane sulfonate in wildlife. *Environ Sci Technol* 35, 1339-1342. <https://doi.org/10.1021/es001834k>.
- Groffen T, Rijnders J, Doorn L, Jorissen C, Borger SMD, Lutikhuis DO, Deyn LD, Covaci A and Bervoets L. 2021. Preliminary study on the distribution of metals and persistent organic pollutants (POPs), including perfluoroalkylated acids (PFAS), in the aquatic environment near Morogoro, Tanzania, and the potential health risks for humans. *Environ Res* 192, 110229. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2020.110299>.
- Hong S, Khim JS, Wang T, Naile JE, Park J, Kwon BO, Song SJ, Ryu J, Codling G, Jones PD and Lu Y. 2015. Bioaccumulation characteristics of perfluoroalkyl acids (PFAAs) in coastal organisms from the west coast of South Korea. *Chemosphere* 129, 157-163. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2014.06.023>.
- Hung MD, Jung HJ, Jeong HH, Lam NH and Cho HS. 2020. Perfluoroalkyl substances (PFASs) in special management sea areas of Korea: Distribution and bioconcentration in edible fish species. *Mar Pollut Bull* 156, 111236. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2020.111236>.
- KNHANES (Korean National Health and Nutrition Survey). 2022. Statistic Database for Estimated Daily Intake. Retrieved from [http://knhanes.kdca.go.kr/knhanes/sub04/sub04\\_04\\_01.do](http://knhanes.kdca.go.kr/knhanes/sub04/sub04_04_01.do) on Jul 27, 2022.
- KOSIS (Korea Statistical Information Service). 2022. Statistic Database for Body Weight. Retrieved from <http://kosis.kr/index/index.do> on Jul 27, 2022.
- Kwon BG, Lim CS, Lim HJ, Na SH, Kwon J and Chung SY. 2015. Monitoring of perfluorinated compounds (PFCs) in the Yeongsan River water system. *J Korean Soc Environ Eng* 37, 303-311. <https://doi.org/10.4491/KSEE.2015.37.5.303>.
- Lee B, Seong JH, Bak S, Lee IS and Choi M. 2019. Distribution and human risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in marine sediments and seafood from Gunsan coast of Korea. *J Environ Anal Health Toxicol* 22, 230-241. <https://doi.org/10.36278/jeaht.22.4.230>.
- Lee H, Khan JB, Lee BM, Kim S, Lee J and Cheon SU. 2017. Monitoring for insecticides, perfluorinated compounds, and brominated flame retardants in the water of Daechung Lake and Geum River Basin. *Korean J Pestic Sci* 21, 161-174. <https://doi.org/10.7585/kjps.2017.21.2.161>.
- Lee JW, Lee HY, Lim JE and Moon HB. 2020. Legacy and emerging per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in the coastal environment of Korea: Occurrence, spatial distribution, and bioaccumulation potential. *Chemosphere* 251, 126633. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.126633>.
- Lee WS, Choi M, Hwang DW, Lee IS and Kim SY. 2012. Chemical contamination and toxicity of sediments from the Gunsan Coast, Korea. *Fish Aquat Sci* 15, 241-250. <https://doi.org/10.5657/FAS.2012.0241>.
- Möller A, Ahrens L, Surm R, Westerveld J, Wielen F, Ebinghaus R and Voogt P. 2010. Distribution and sources of polyfluoroalkyl substances (PFAS) in the River Rhine watershed. *Environ Pollut* 158, 3243-3250. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2010.07.019>.
- Moon HB, Kannan K, Yun S, An YR, Choi SG, Park JY, Kim ZG, Moon DY and Choi HG. 2010. Perfluorinated compounds in minke whales (*Balaenoptera acutorostrata*) and long-beaked common dolphins (*Delphinus capensis*) from Korean coastal waters. *Mar Pollut Bull* 60, 1130-1135. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2010.04.007>.
- Park M, Wu S, Lopez IJ, Chang JY and Karanfil T. 2020. Adsorption of perfluoroalkyl substances (PFAS) in groundwater by granular activated carbons: Roles of hydrophobicity of PFAS and carbon characteristics. *Wat Res* 170, 115364. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2019.115364>.
- Shen A, Lee S, Ra K, Suk D and Moon HB. 2018. Historical trends of perfluoroalkyl substances (PFASs) in dated sediments from semi-enclosed bays of Korea. *Mar Pollut Bull* 128, 287-294. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2018.01.039>.
- Shin MY, IM JK, Kho YL, Choi KS and Zoh KD. 2009. Quantitative determination of PFOA and PFOS in the effluent of sewage treatment plants and in Han River. *J Environ Health Sci* 35, 334-342. <https://doi.org/10.5668/JEHS.2009.35.4.334>.
- Son HJ, Hwang YD, Yoom HS, Choi JT and Kwon KW. 2013. Detection of perfluorinated compounds (PFCs) in Nakdong River Basin. *J Korean Soc Environ Eng* 35, 84-93. <https://doi.org/10.4491/KSEE.2013.35.2.084>.
- US EPA (United States Environmental Protection Agency). 2016a. Health Effects Support Document for Perfluorooctane Sulfonate (PFOS). Retrieved from <http://www.epa.gov/>

sites/production/files/2016-05/documents/pfos\_hesd\_final-508.pdf on Jul 26, 2022.

US EPA (United States Environmental Protection Agency). 2016b. Health Effects Support Document for Perfluorooctanoic Acid (PFOA). Retrieved from [http://www.epa.gov/sites/production/files/2016-05/documents/pfoa\\_hesd\\_final-plain.pdf](http://www.epa.gov/sites/production/files/2016-05/documents/pfoa_hesd_final-plain.pdf) on Jul 26, 2022.

White ND, Balthis L, Kannan K, Silva AOD, Wu Q, French KM, Daugomah J, Spencer C and Fair PA. 2015. Elevated levels of perfluoroalkyl substances in estuarine sediments of Charleston, SC. *Sci Total Environ* 521-522, 79-89. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.03.078>.

Zhang DQ, Zhang WL and Liang YN. 2019. Adsorption of perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances (PFASs) from aqueous solution - A review. *Sci Total Environ* 694, 113606. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.133606>.

Zhou Z, Liang Y, Shi Y, Xu L and Cai Y. 2013. Occurrence and transport of perfluoroalkyl acids (PFAAs), including short-chain PFAAs in Tangxun Lake, China. *Environ Sci Technol* 47, 9249-9257. <https://doi.org/10.1021/es402120y>.