

南海岸産 水産食品 중 유기염소계 殘留農藥에
관한 調査研究

李 瑞 來 · 姜 淳 英
韓國原子力研究所 農業生化學研究室
(1976월 7일 12일 수리)

A Survey on the Residues of Organochlorine
Pesticides in Some Marine Foods from
South Coast of Korea

by

Su-Rae Lee and Soon-Young Kang

*Agricultural Biochemistry Laboratory, Korea Atomic
Energy Research Institute, Seoul*

(Received July 12, 1976)

Abstract

The appearance of organochlorine pesticide residues in shellfish, seaweed, mud and water samples collected from south coast of Korean peninsula in September 1974 was surveyed to obtain the following results.

1) The residues in shellfish samples were found to be in the orders of Choongmoo > Yeosoo > Busan > Mokpo area, top-shell > short-necked clam > mussel > hard clam > red-shell, aldrin > α -BHC > heptachlor > γ -BHC > dieldrin > heptachlor epoxide > endrin and in the range of 0-49 $\mu\text{g}/\text{kg}$ edible fresh muscle.

2) The residues in seaweed samples from Wando area were found to be in the orders of tangle > green laver > laver, α -BHC > γ -BHC > aldrin > dieldrin > heptachlor > heptachlor epoxide > endrin and in the range of 0-60 $\mu\text{g}/\text{kg}$ dry matter.

3) The residues in water samples were found to be in the orders of Yeongsan River > Nakdong River > Seomjin River > Choongmoo shellfish farm, α -BHC > γ -BHC > aldrin > heptachlor > dieldrin > heptachlor epoxide > endrin and in the range of 0-180 $\mu\text{g}/\text{kl}$ while those in mud samples were in the order of α -BHC > γ -BHC > aldrin > dieldrin > heptachlor > heptachlor epoxide > endrin and in the range of 0.7-18 $\mu\text{g}/\text{kg}$ dry matter. It should be noted that BHC contents of water samples from Yeongsan and Nakdong rivers were far above the recommended environmental levels in USA.

서 론

食糧생산 및 衛生寄蟲의 방제를 위하여 사용되는 농약중 有機鹽素系 殺蟲劑는 殘留毒性이 알려져 自然生態系를 오염시킬 뿐만 아니라 食品連鎖(food chain)를 통하여 동물체에 농축되는 특성을 가지고 있다. 이에 따라 1970년경부터 세계적으로 그의 사용을 제한하게 되었다. 우리나라에서는 1949년부터 DDT, BHC, heptachlor, drin劑, toxaphene등의 有機鹽素系 살충제를 사용하여 1974년까지 2,617톤에 이르는 大量이 살포되었다.⁽¹⁾ 따라서 이들이 자연환경내에 잔류하여 環境汚染과 食品汚染을 일으키게 되므로 이들의 推移에 대한 monitoring이 계속적으로 요청되고 있다.

선진제국에 있어서는 10여년전부터 殘留農藥에 의한 食品汚染이 사회문제화됨에 따라 이에 대한 體系的인 調査研究가 수행되어 식품중 농약의 殘留許容量이 설정된 바 있으며 국제적 노력으로서 國際食品規格委員會(Codex Alimentarius Commission)의 하부기관인 殘留農藥規格部會(Codex Committee on Pesticide Residues)에서는 1966년부터 國際食品規格計劃(Joint FAO/WHO Food Standards Programme)의 일환으로 식품중 잔류농약의 國際的 許容量을 설정하기 위한 작업을 추진하고 있다.⁽²⁾ 우리나라에 있어서는 1971년부터 殘留毒性농약의 작물별 安全使用基準에 의하여 농약사용을 규제하고 있으며 식품중 殘留許容量은 설정하지 않고 있다.⁽³⁾ 국내산 식품중 농약의 實際殘留量에 대해서는 1968년부터 국립보건연구원을 위시한 연구기관에서 조사, 보고된 바 있으나⁽⁴⁻¹⁴⁾ 충분한 資料가 축적되지 못한 실정에 있다.

따라서 본 연구는 국내산 식품중에서 有機鹽素系 살충제의 生物濃縮에 의한 殘留毒性이 예상되는 水産物 특히 貝類 및 海藻類와 아울러 이들이 捷息하는 水質 및 底質土중의 農藥殘留量을 조사하였으므로 이에 그 결과를 보고한다.

재료 및 방법

1. 分析試料 및 試藥

각종 시료는 1974년 9월중순 현지에서 채취한 후 저온을 유지하면서 곧 실험실로 운반하여 시료조제를 하였다. 貝類는 可食部만을 취하여 秤量후 동결시킨 상태에서 분석시까지 -20°C에 보존하였다. 海藻類 및 底質土는 실온에서 陰乾한 후 분쇄하여 각각 20 및 10 mesh체를 통과시킨 후 분석시까지 냉상고에 보관하였다

물은 분석시까지 5°C에 보존하였으며 靜置에 의하여 얻어지는 上澄液을 glass wool로 여과후 供試하였다.

각종 시약은 既報⁽¹⁾에서와 같이 入手하여 사용하였다

2. 殘留農藥의 抽出 및 精製法

1) 貝類시료

Mills의 acetonitrile extraction-florisil column법(high moisture products)에 의하여 추출, 정제하였다.⁽¹⁵⁾ 즉 절단한 시료 100g과 acetonitrile 200 ml를 waring blender에 넣고 高速에서 1-2분간 마쇄한 후 여과하였다. 여액의 용량(F)을 측정한후 1L 분액여두에 옮기고 petroleum ether 100 ml를 가하여 1-2분간 격렬하게 진탕한 후 NaCl 포화용액 10ml, H₂O 약 600 ml를 다시 가하여 15초간 충분히 진탕하였다. 靜置후 분리되는 수용액층을 제거하고 유기용매층은 H₂O 100 ml로 2회 반복하여 세척한 후 100 ml 용량의 密栓시린더에 옮겨 그 용량(P)을 기록하였다. 이에 약 15 g의 무수 황산소다를 넣어 진탕, 탈수한 후 Kuderna-Danish 농축기로 5 ml로 농축하였다. 이 농축액을 Florisil column (2.5×10 cm, 상층에 약 1 cm의 무수황산소다層)에 添加한 후 petroleum ether: ethyl ether (94 : 6) 혼합용매 200 ml와 petroleum ether: ethyl ether (85 : 15) 혼합용매 200 ml로 순차적으로 5 ml/min의 流出속도로 溶出하였다. 溶出液은 Kuderna-Danish 농축기에 의하여 용매를 완전히 제거한 후 1ml의 일정량으로 만들고 1-5 μl를 gas chromatography에 의하여 분석하였다. Florisil column에 넣은 시료의 중량(g)은 다음과 같이 계산하였다.

$$g = Sx(F/T) \times (P/100)$$

S : 사용한 시료의 g 수

F : acetonitrile추출여액의 용량

T : 총용적(시료중 H₂O의 ml수+첨가한 acetonitrile의 ml수-용적수축에 의한 補正ml수). Acetonitrile 200 ml에 대하여 H₂O 80-95 ml의 경우 수축용적은 6 ml로 간주함.

P : 회수한 석유에테르 추출액의 ml 수

2) 海藻시료

Mills의 acetonitrile extraction-florisil column법(dry products)에 의하여 추출, 정제하였다.⁽¹⁵⁾ 즉 분진한 해조를 약 20 mesh로 분쇄한 시료 20g에 물 80 ml를 가하여 물이 해조시료에 의하여 완전히 흡수될 때까지 15분간 放置하였다. 이에 acetonitrile 200 ml를 첨가하여 waring blender로 高速에서 5분간 추출한 후 여과하였다. 이후의 과정은 貝類시료에서와 동일한 방법으로 진행하였다.

3) 물 및 底質土시료

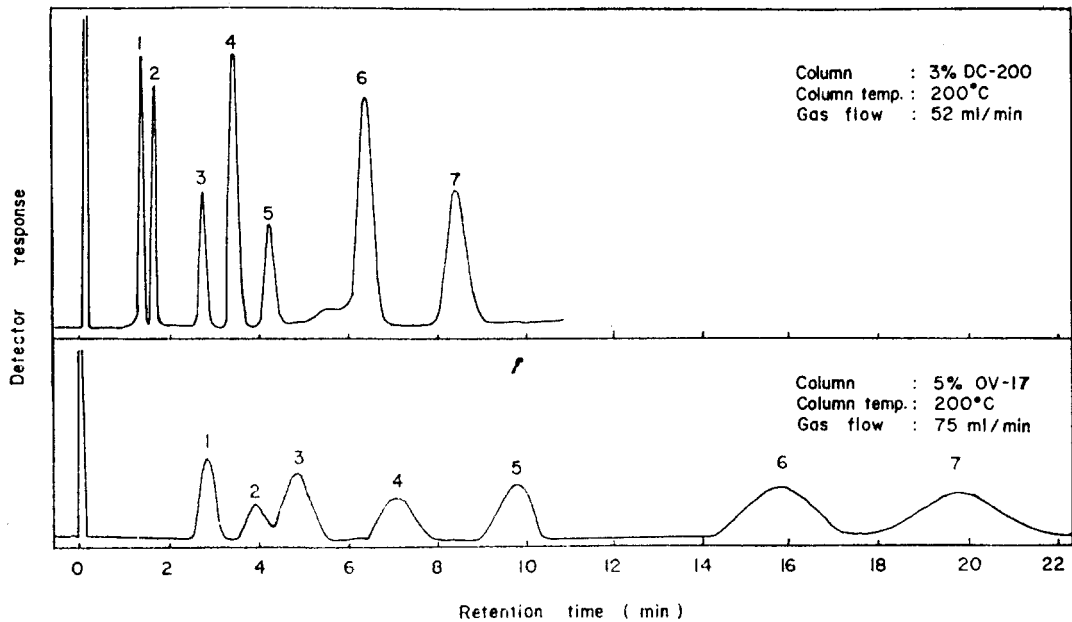


Fig. 1. Elution patterns of authentic organochlorine pesticides by gas-liquid chromatography with an electron capture detector (⁶³Ni)

1. α -BHC (0.2 ng) 2. γ -BHC (0.2 ng) 3. Heptachlor (0.2 ng) 4. Aldrin (0.2 ng)
 5. Heptachlor epoxide (0.2 ng) 6. Dieldrin (0.8 ng) 7. Endrin (0.8 ng)

既報⁽¹⁾에서와 같이 추출, 정제과정을 거쳐 분석시료를 조제하였다.

3. Gas chromatography에 의한 分別定量法

분석기기는 Varian Aerograph 회사의 Gas Chromatograph Model 2100-40을 사용하였으며 다음과 같은 조건에서 조작하였다.

- Column : 6 mm × 180 cm stainless steel
- Packing : 3% DC-200 (silicone) or 5% OV-17(methyl phenyl silicone)/80-100 mesh Chromosorb W, AW
- Detector : electron capture detector (⁶³Ni)
- Electrometer sensitivity : 10⁻¹⁰
- Attenuator : 8 or 16
- Recorder response : 1 mV full scale
- Chart speed : 0.5 inches/ minute
- Carrier gas flow rate : N₂(99.99995%, purified by molecular sieve 5A) 52 ml/minute for DC-200 column and 75 ml/minute for OV-17 column
- Temperature : injection port, 225°C; column oven, 200°C; detector oven, 245°C.

표준화합물로서 α -BHC, γ -BHC, heptachlor, heptachlor epoxide, aldrin, dieldrin, endrin을 n-hexane에 용해하여 0.005, 0.0075, 0.01, 0.05, 0.1, 0.5, 1 ppm 이

외도록 희석하고 이 표준용액을 3 μ l씩 gas chromatography에 주입하여 분리시켰고 peak 면적은 삼각형법으로 계산하였다. 이에서 檢量曲線을 작성하고 未知시료의 peak면적으로 부터 각 화합물의 농도를 구하였다. DC-200 column은 定量용에 사용하였고 OV-17 column은 同定 및 確認용에 사용하였다. 이들 두가지 column

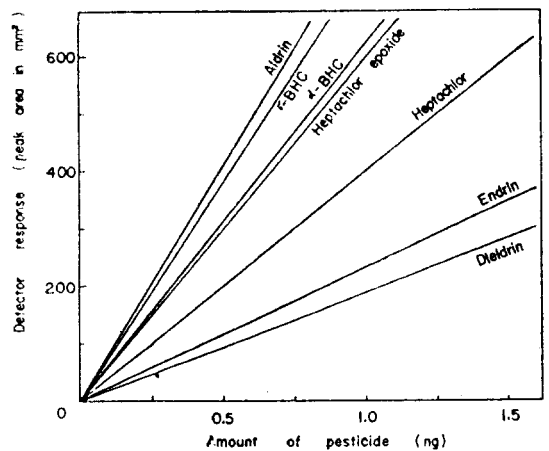


Fig. 2. Calibration curves for organochlorine pesticides in gas liquid chromatographic analysis with DC-200 column and electron capture detector

에 의한 표준화합물의 분리패턴은 Fig. 1과 같으며 檢量曲線은 Fig. 2와 같다.

결과 및 고찰

1. 貝類의 잔류농약 함량

우리나라 南海岸에 위치한 양식장 또는 수산물 시장에서 수집한 패류의 특성을 보면 Table 1과 같고 이들 시료의 유기염소계 잔류농약의 함량을 보면 Table 2와 같다. 패류 시료의 수집장소와 종류에 따라 각각 다른 함량을 나타내었는 바 지역별로는 충무>여수>부산>목포의 순으로 나타났으며 패류의 종류별로는 소라>

바지락>홍합>백합>꼬막의 순서로 나타났다. 각종 농약성분의 농축패턴을 보면 물이나 저질토에서의 組成과 패류에서의 組成이 약간 다른 것으로 보아 농약의 종류에 따라 패류에 의한 吸收能과 代謝能이 다른 것으로 생각되며 대부분의 경우 aldrin > α-BHC > heptachlor > γ-BHC > dieldrin > heptachlor epoxide > endrin의 순서로 농축현상을 나타내었다. Aldrin과 dieldrin은 Chau⁽¹⁶⁾도 지적한바와 같이 gas chromatography에 의한 분리과정에서 polychlorinated biphenyl 류의 peak와 overlap되기때문에 비교적 높은 값을 나타냈으며 비교 column을 사용하여도 그 분리가 이루어지지 아니하였다.

Table 1. Description of shellfishes collected from south coast of Korea in September 1974 for the analysis of pesticide residues

Common name (Korean)	Scientific name	Location collected	Average wt. (g)/shell(s)	Muscle wt. (g)/kg shells	Shell wt. (g)/kg shells
Hard clam (백합)	<i>Meretrix lusoria</i>	Busan	239.3	215	558
		Yeosoo	83.3	208	522
Mussel (홍합)	<i>Mytilus coruscus</i>	Choongmoo	34.5	346	408
Red-shell (꼬막)	<i>Anadara granosa</i>	Mokpo	8.7	273	675
Short-necked clam (바지락)	<i>Tapes philippinarum</i>	Choongmoo	5.1	320	636
		Busan	10.4	306	559
		Yeosoo	7.8	339	424
Top-shell (소라)	<i>Turbo cornutus</i>	Choongmoo	97.3	358	536
		Busan	93.3	329	546
		Yeosoo	89.5	296	636

Table 2. Residues of organochlorine pesticides in shellfishes from south coast of Korea (Unit: μg/kg edible fresh muscle)

Shellfishes	Location collected	α-BHC	γ-BHC	Hepta chlor	Hepta-chlor epoxide	Aldrin	Dieldrin	Endrin
Hard clam	Busan	6.0	0.9	1.0	1.8	12.8	7.7	0.5
	Yeosoo	2.8	6.7	10.6	0.6	2.4	1.0	0.2
Mussel	Choongmoo	10.0	2.2	3.0	1.1	12.0	6.1	0.2
Red-shell	Mokpo	3.8	0.6	2.3	0.2	1.1	5.0	0.3
Short-necked clam	Choongmoo	5.2	3.0	6.0	8.2	39.0	2.7	2.0
	Busan	6.0	5.5	6.1	0.5	8.7	1.0	0.5
	Yeosoo	10.4	2.9	2.6	0.7	0.9	2.1	0.1
Top-shell	Choongmoo	17.4	1.3	4.0	2.9	8.3	0.9	0.6
	Busan	6.0	2.7	0.5	2.6	2.7	0.7	0.2
	Yeosoo	14.0	8.1	1.4	0.5	11.4	15.0	ND

패류에 대한 농약의 殘留許容量은 우리나라나 외국에서 아직 설정되지 않고 있는 형편이다. 여기에서 분석한 패류의 각종 농약의 잔류량을 보면 0-39 μg/kg (肉質生體重)의 범위에 있었으며 이는 미국⁽¹⁷⁾에서 조

사한 패류에서의 잔류량인 0-54 μg/kg과 비슷한 범위이었다. 그러나 외국에 있어서 농산물에 대한 유기염소계 살충제의 잔류허용량⁽¹⁸⁾과 비교하여 볼때 패류의 잔류농약수준은 매우 낮은 값으로 현재로서는 패류의

食用化에 아무런 지장이 없을 것으로 생각된다.

2. 海藻類의 잔류농약 함량

해조류중 가장 널리 食用되는 파래, 김, 미역을 莞島지역에서 수집하여 분석한 잔류농약의 함량을 보면 Table 3과 같다. 이들 시료에는 α -BHC > γ -BHC > aldrin > dieldrin > heptachlor > heptachlor epoxide > endrin의 순서로 나타났고 해조의 종류별로는 미역 > 파래 > 김의 순으로 나타났으며 0-60 $\mu\text{g}/\text{kg}$ (乾物重)범위에 존재하였다.

이것을 패류에서의 잔류량과 비교하여 보면 α -BHC나 γ -BHC는 상당히 많은 양으로 나타났으나 生體重(80% 수분)으로 환산하면 비슷한 수준이 되며 해조류에 대한 잔류허용량이 설정되어 있지 않은 현재로서 어느 정도의 위험한계에 있는지 언급할 수 없다. 그러나 농산물에 대한 이들 농약의 残留基準⁽¹⁸⁾과 비교하여 볼 때 해조류의 잔류농약수준은 아직도 매우 낮은 값이므로 현재로서는 해조류의 食用化에 아무런 지장이 없을 것으로 판단된다.

Table 3. Residues of organochlorine pesticides in edible seaweeds from Wando area, south coast of Korea (Unit: $\mu\text{g}/\text{kg}$ dry matter)

Seaweeds	α -BHC	γ -BHC	Hepta-chlor	Heptachlor epoxide	Aldrin	Dieldrin	Endrin
Green laver (파래)	52.0	14.0	1.4	1.2	2.0	6.3	ND
Laver (김)	19.0	16.0	4.3	1.5	17.0	8.1	ND
Tangle (미역)	60.0	23.0	3.5	7.0	16.0	8.7	ND

Table 4. Residues of organochlorine pesticides in water and mud samples from south coast of Korea in September 1974 (Unit: $\mu\text{g}/\text{kl}$ water or kg dry mud)

Location	Sample	α -BHC	γ -BHC	Hepta-chlor	Hepta-chlor epoxide	Aldrin	Dieldrin	Endrin
Lower basin of Yeongsan River near Mokpo city	Water	160.0	180.0	9.0	1.3	40.0	2.6	ND
	Mud	18.0	11.0	1.4	1.0	8.7	5.0	1.0
Lower basin of Seomjin River (clam farm)	Water	12.0	10.0	1.7	2.0	24.0	36.4	20.0
	Mud	5.1	4.5	2.0	1.2	6.5	4.9	0.9
South coast of Choongmoo city (shellfish farm)	Water	12.0	12.0	1.0	4.8	12.0	6.7	1.3
	Mud	17.0	9.0	5.0	3.7	6.3	4.0	0.7
Lower basin of Nakdong River near Busan(Koopo)	Water	62.0	36.0	36.0	0.7	8.0	6.7	1.3
	Mud	6.2	2.6	0.6	1.7	2.0	1.1	1.3

3. 水質 및 底質土의 잔류농약 함량

貝類시료의 수집장소에 인접한 江下流 또는 양식장에서 채취한 수질 및 지질토의 잔류농약 함량을 보면 Table 4와 같이 채취한 장소에 따라 상당한 차이를 나타내었다. 특히 江下流의 수질시료가 沿岸인 양식장의 수질시료보다 많았는 바 이는 섬진강이나 충무양식장은 農土를 광범위하게 포괄하지 못하며 다른 한편 영산강이나 낙동강은 오랜기간 농약의 사용량이 많은 湖南 및 嶺南지방의 많은 곡창지대에서 씻겨 내려오는것에 의하지 않나 생각된다. 지역별로 보면 영산강 > 낙동강 > 섬진강 > 충무양식장의 순으로 나타났으며 각종 농약의 평균잔류량을 보면 수질시료에서는 α -BHC > γ -BHC > aldrin > heptachlor > dieldrin > heptachlor epoxide > endrin의 순서로 0-180 $\mu\text{g}/\text{kl}$ 의 범위에 존재하였으며 저질토에서는 α -BHC > γ -BHC > aldrin > dieldrin > heptachlor > heptachlor epoxide > endrin

의 순서로 0.7-18 $\mu\text{g}/\text{kg}$ (乾物重)의 범위에 존재하였다.

미국에 있어서 海洋水産生物에 대한 수질중 유기염소계농약의 許容量을 보면^(19,20) EPA에서는 LC₅₀(96시간)의 1/100로 정하였고 NTAC에서는 50 $\mu\text{g}/\text{kl}$ 로 설정하고 있다. 이에 대하여 영산강의 수질을 보면 α -BHC와 γ -BHC는 50 $\mu\text{g}/\text{kl}$ 를 3배나 上廻하였으며 aldrin은 그 許容量에 육박하였다. 낙동강인 경우 α -BHC가 약간 上廻한 경우가 있으나 그 이외는 모두 이 許容量을 下廻하였다. 그러나 底質土의 잔류농약 함량은 0.6-18 $\mu\text{g}/\text{kg}$ (風乾物)정도로 시료채취장소나 水質시료중의 함량간에 큰 相關性을 찾아볼 수 없었다. 그 이유로서는 시료채취시기가 9월이었으므로 湖南 및 嶺南지방의 農耕地가 집중되어 있는 上流로부터 많은 양의 농약이 씻겨 내려와 영산강이나 낙동강의 水質에 많은 양의 농약이 오염되어 있었고(특히 다량의 BHC제제를 당해년

도에 사용함) 토양에 흡착되는 데에는 오랜 시간이 필요한 때문이 아닌가 생각된다. 그러나 계속해서 많은 농약을 쓰는 경우 沿岸에 확산되어 지금보다는 훨씬 많은 농약이 底質土에 축적될 가능성이 있다.

그러나 이미 지금도 이들 底質土의 잔류농약 함량은 그 위를 흐르고 있는 물층의 함량보다도 單位重量當 훨씬 높은 양을 나타내고 있는 바 이는 토양입자에 의한 농약성분의 흡착에 의한 결과라 생각된다. 또 한가지 유의할 점은 우리들이 食用하는 貝類는 바다의 底質土 중에 장기간 捷息하고 있으므로 잔류농약이 食用가능한 水産資源에 흡수 축적되어 피해를 줄 가능성이 있다. 따라서 지금보다 더 확산 악화되기 전에 廣域的인 汚染實態조사를 國策적으로 실시하여 농약잔류분의 분포파악은 물론 그 영향도 조사하고 더 나아가 잔류농약에 대한 環境基準과 食品중 許容量을 설정하므로써 環境 및 國民保健의 관리에 기여하도록 해야 될 것이다

요 약

南海岸一帶에서 1974년 9월에 수집한 貝類, 海藻類, 底質土 및 水質중의 有機鹽素系 농약잔류량을 분석한 결과는 다음과 같다.

1) 貝類중 잔류농약은 產地 및 종류에 따라 달리 나타났는 바 產地별로는 兪수>여수>목포의 순으로, 貝類별로는 소라>바지락>홍합>백합>꼬막의 순으로, 농약별로는 aldrin > α-BHC > heptachlor > γ-BHC > dieldrin > heptachlor epoxide > endrin의 순으로 0-49 μg/kg (肉質 生體重)의 범위에 존재하였다.

2) 莞島産 海藻類중 잔류농약은 미역>파래>김의 순으로 그리고 α-BHC > γ-BHC > aldrin > dieldrin > heptachlor > heptachlor epoxide > endrin의 순으로 0-60 μg/kg(乾物重)의 범위에 존재하였다.

3) 水質 및 底質土중의 잔류농약은 지역별로는 영산강 > 낙동강 > 섬진강 > 충무양식장의 순으로 水質에서는 α-BHC > γ-BHC > aldrin > heptachlor > dieldrin > heptachlor epoxide > endrin의 순으로 0-180 μg/kg의 범위에 존재하였으며 底質土에서는 α-BHC > γ-BHC > aldrin > dieldrin > heptachlor > heptachlor epoxide > endrin의 순으로 0.7-18 μg/kg(乾物重)의 범위에 존재하였다. 특히 영산강 및 낙동강 下流의 水質중 BHC含量은 미국에서의 環境基準値를 훨씬 上廻하였다.

참 고 문 헌

1) 李瑞來, 姜淳英, 朴昌奎, 李鉦浩, 盧在植 : 한국농

화학회지, 19, 93 (1976)

2) 石居昭夫(編) : 國際食品規格計劃の全貌, 食品資材研究會, 東京, 241 p. (1970).

3) 權肅杓, 尹明照, 鄭勇 : 公害와 對策, 중앙경제사, 第3卷 第3章 (1973).

4) 朴聖錫, 韓成植 : 農村振興廳 植物環境研究所 試驗研究報告書, I-173 (1967).

5) 盧晶培, 宋哲, 金基環, 權赫姬, 尹公德, 金榮錫, 姜信福 : 국립보전연구원보, 6, 237 (1969).

6) 盧晶培, 宋哲, 金基環, 權赫姬, 尹公德 : 국립보전연구원보, 7, 237 (1970).

7) 盧晶培, 宋哲, 權赫姬, 金吉生, 申碩釘, 李興在, 元敬豐, 朱昌奎 : 국립보전연구원보, 8, 261 (1971).

8) 盧晶培, 宋哲, 權赫姬, 金吉生, 李興在, 元敬豐, 池文煥 : 국립보전연구원보, 9, 191 (1972).

9) 盧晶培, 宋哲, 申光淳, 金吉生, 李興在, 元敬豐, 池漢燮 : 국립보전연구원보, 10, 257 (1973).

10) 姜漢吉 : 公衆保健雜誌, 8, 121 (1971).

11) 權肅杓, 尹明照, 金政煥, 鄭勇, 任昌國 : 中央醫學, 22, 573 (1972).

12) 朴昌奎, 俞在潤 : 한국농화학회지, 15, 7 (1972).

13) 朴昌奎, 李奎承, 俞在潤 : 한국농화학회지, 17, 177 (1974).

14) 박창규 : 한국농화학회지, 18, 61 (1975).

15) Anonymous: *Pesticide Analytical Manual*, Revised, U. S. Dept. of Health, Education and Welfare, Food and Drug Administration, Washington, D C., Vol. 1, Chapter 2 (1969).

16) Chau, A. S. Y.: *J. Assoc. Offic. Anal. Chem.*, 57, 585 (1974).

17) Foehrenbach, J., Mahmood, G. and Sullivan, D.: *Pestic. Monit. J.*, 5, 242 (1971).

18) 李瑞來 : 韓國에서의 國家發展과 人間環境에 관한 會議 報文集, 韓國原子力研究所 · 서울大學校環境大學院, p. 305 (1975).

19) Anonymous: *Methods for Organic Pesticides in Water and Wastewater*, Environmental Protection Agency, National Environmental Research Center, Cincinnati, Ohio, 38 p. (1971).

20) Anonymous: *Comparison of NTAC, NAS, and Proposed EPA Numerical Criteria for Water Quality*, Environmental Protection Agency, Washington, D. C., 12 p. (1971).