J. Fd Hyg. Safety 19(4), 176–184 (2004)

한국인의 모델식이에 대한 다환방향족탄화수소류(PAHs)의 인체노출량평가

김윤희 · 윤은경 · 이효민 · 박경아 · 전은아 · 이철호* · 최상윤* · 임승택* · 제금련 · 최광식
*식품의약품안전청, *고려대학교 식품공학과*

Exposure Assessment for Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Model Menu System of Korean

YunHee Kim, EunKyung Yoon, HyoMin Lee, KyungAh Park, EunAh Jun, CherlHo Lee*, SangYun Choi*, SeungTaek Lim*, KeumRyun Ze and KwangSik Choi
Korea Food and Drug Administration
**Graduate School of life science and biotechnology, Korea Univ.*

ABSTRACT – This study was conducted to compare and estimate the daily PAHs dietary intake from both home-cooking and dining-out, through approach of model diet used in exposure assessment of food contaminants. Food commodities reflecting in model diet were selected from the KHIDI report and were analysed in cooked or uncooked edible forms using HPLC-Fluorscence Detector. The PAHs dietary intake comparison between home-cooking and dining-out was based on one meal intake suggested in model diet and PAHs dietary intake was estimated by using food consumption rate and body weight of the Korean adult group. The daily PAHs dietary intake was calculated by permutation and combination method with assumption that a person consumed 2 meals from home-cooking menu and 1 meal from dining-out menu. The total PAHs levels in 36 food commodities with 200 samples were ranged from 2.00 ug/kg to 141.28 ug/kg and a food showing the highest PAHs level was the stir-fried anchovy. The TEQ_{BaP} levels of PAHs were calculated using benzo(a)pyrene equivalents individual congener level and corresponding TEF value and the TEQ_{BaP} level were ranged from 0.03 ugTEQ_{BaP}/kg to 1.31 ugTEQ_{BaP}/kg and a food showing the highest TEQ_{BaP} level was the hamburger. The PAHs dietary intakes per one meal from home-cooking and dining-out were 2.4×10^{-3} ugTEQ_{BaP}/kg/meal and 4.0×10^{-3} ugTEQ_{BaP}/kg/meal, respectively. This data showed the PAHs dietary intake from dining-out was about 1.7 times higher than from the home-cooking. The daily PAHs dietary intakes of general Korean adult having two meals from home-cooking and one meal from dining-out per a day were ranged between 8.0×10^{-3}~9.7×10^{-3} ugTEQ_{BaP}/kg/day and mean value as 8.9×10^{-3} ugTEQ_{BaP}/kg/day.

Key words: PAHs(Polycyclic Aromatic hydrocarbons), KHIDI(Korea Health Industry Development Institute), TEQ(Toxic Equivalents), TEFs(Toxic Equivalency Factors)

다환방향족탄화수소류(Polycyclic Aromatic hydrocarbons, PAHs)는 2개 이상의 벤젠고리가 선형으로 각을 지어 있거나 밀집된 구조로 이루어져 있는 유기화합물로서 동종 화합물이 수백 종에 이르고 있다.[1,2] 독성이 주로 알려진 화합물은 benzo(a)pyrene 외 50종으로 밝혀졌고, 특히 benzo(a)pyrene, benzo(a)anthracene, dibenzo(a,h)anthracene, chrysene 등은 유전독성과 발암성을 나타내는 것으로 알려지고 있다.[3] 이 중 benzo(a)pyrene은 PAHs 화합물 중 가장 많은 연구가 수행된 물질로서, PAHs 화합물의 대표물질로 고려되고 있으며, mouse, rat, hamster, rabbit, guinea pig, duck, dog, monkey를 포함한 다수의 동물 종에서 태아독성, 최기형성, 돌연변이성을 나타냈다.[4] U.S.EPA(1992)의 발암성등급에 따르면 benzo(a)anthracene, benzo(a)pyrene, dibenzo(a,h) anthracene, benzo(b)fluoranthene, benzo(k)fluoranthene, chrysene, indeno(1,2,3-c,d)pyrene은 group B2(probable human carcinogen)로 분류되어 있다.[7] PAHs 화합물 개별 congener에 대한 역학자료는 전혀 없으며, 굴뚝청소부집단에서 전립선암을 일으키는 불완전연소물질의 지속적인 노출과 7년간 근무한 석탄 공장 노동자집단에서 피부암를 증가시킨다는 일부 보고가 있을 뿐이다.[5,6]

PAHs와 같이 개별 화합물들의 독성기전이 동일할 경우 이들의 노출평가는 화합물을 대표할 수 있는 물질을 기준으로 상대독성계수(toxic equivalency factors, TEFs)를 정하여 동시노출에 대한 노출평가를 실시하고 있다. 유기탄소화합물의

†Author to whom correspondence should be addressed.

불완전연소에 의해 주로 발생하는 PAHs 화합물은 일반인들의 주요인체노출경로가 대기오염에 의한 호흡노출, 숯불구이와 같은 가열조리식품의 경구섭취로 알려지고 있다.[8-10]

현재까지 보고된 바에 의하면 나라별 식품섭취를 통한 인체노출량은 식품섭취패턴에 따라 큰 차이를 나타내는데 그 노출수준은 3~17 ug/day 이었으며,[11,12] 일반인에게 노출되는 PAHs 화합물의 총 노출량 중에 식품섭취를 한 노출이 호흡을 한 노출보다 더 크다고 알려지고 있다.[9,10,12]

우리나라 사람들의 식품섭취패턴을 반영한 최근 연구결과에 따르면 PAHs 화합물의 주요노출기여식품은 숯불닭고기구이, 숯불삼겹살구이, 숯불쇠고기구이 등과 같은 숯불구이 조리방법을 적용한 식품이었다. 비록 제한된 식품을 반영하긴 하였지만, 성인 1일인체노출량은 4.32×10^{-7} $mgTEQ_{BaP}$/kg/day 수준인 것으로 보고된 바 있다. 최근조사에 의하면 우리나라 사람들의 외식섭취빈도가 매년 증가하고 있어, 유아기를 제외한 우리나라 국민들의 1일 1회이상 외식 섭취하는 비율이 26.3%[16] 수준이고, 선행 연구에 따른 PAHs 주요노출기여 식품이 주로 외식을 통해 섭취 가능한 식품이어서 외식섭취인구비율이 증가할수록 PAHs 화합물의 고노출량 그룹이 상대적으로 증가할 것으로 보인다.

본 연구에서는 전형적인 한국인의 식생활패턴을 반영한 모델식이방법을 활용하여 일반가정식과 외식 섭취에서의 PAHs 화합물 인체노출량 수준을 비교 평가하고자하였다. 구체적인 연구목적은 첫째, 우리나라 다소비·다빈도 식품을 참고로 가정식과 외식 식단을 작성하고 둘째, 작성한 식단을 근거로 식품 중 PAHs 화합물의 오염도를 분석하며 셋째, 분석된 PAHs 화합물의 오염도자료를 활용한 가정식과 외식식단의 인체노출량을 비교 평가하고자 하였다.

연구방법

가정식과 외식 식단 작성

가정식과 외식으로 인한 PAHs 화합물 인체노출량비교를 위하여 한국인의 대표식품에 관한 보고서(한국보건산업진흥원, 2003)를[17] 근거로 다소비·다빈도 식품을 반영하여 식단을 작성하였다. 가정식은 1식 4찬(밥, 국, 주찬, 부찬1, 부찬2, 김치, 후식)으로 4종류 식단을 작성하였으며, 외식은 우리나라 사람들의 외식 시 주로 먹는 음식(소비자보호원, 2000)을 반영하여 4종류 식단을 작성하였다.

식품 중 PAHs 화합물의 오염도 분석

분석대상 식품 – PAHs 화합물의 오염도 분석은 쌀밥(10), 식빵(10), 미역국(3), 콩나물국(3), 된장찌개(3), 고등어구이(10), 조기구이(3), 소시지구이(3), 햄구이(3), 베이컨구이(3), 숯불쇠고기구이(10), 숯불삼겹살구이(10), 오븐닭고기구이(3), 두부구이(10), 계란말이(3), 멸치볶음(3), 오뎅볶음(10), 느타리버섯볶음(3), 표고버섯볶음(3), 감자볶음(3), 양파볶음(3), 감자튀김(3), 시금치나물(10), 콩나물무침(3), 치킨무(3), 배추김치(10), 깍두기(3), 파김치(3), 우유(10), 콜라(10), 햄버거(4), 감(3), 귤(10), 배(3), 사과(10), 상추(3)등을 포함한 조리된 식품 30종과 비조리 식품 6종을 대상으로 하였으며, ( )는 샘플 수를 의미한다.

식품조리방법 – 밥류, 구이류, 국류, 찌개류, 전류, 나물류 등의 식품은 각각의 3 가구로부터, 우리나라에서 전형적으로 사용하는 조리방법에 따라 조리한 식품을 수집하여 분석하였고, 김치류, 과일류, 우유류, 패스트푸드류, 빵류, 음료류는 시중에 판매되는 제품을 구입하여 분석하였다.

분석대상물질 – Naphthalene (NA), Fluorene (FL), Phenanthrene (PH), Anthracene (AN), Fluoranthene (Fluo), Pyrene (PY), Chrysene (CH), Benzo(a)anthracene (BaA), Benzo(a)fluoranthene (BaF), Benzo(k)fluoranthene (BkF), Benzo(a)pyrene (BaP), Dibenzo(a,h)anthracene (DahA), Benzo(g,h,i)perylene (BghiP), Indeno(1,2,3-c,d)pyrene (IP) 등 14종의 개별 PAH 화합물을 대상으로 분석하였다.

식품 중 PAHs 화합물 분석

i) 콜라와 우유분석

10 ml 튜브에 시료 2 ml을 담아 0.4 M NaOH/EtOH-Water(9:1, v/v) 4 ml을 가하여 60°C에서 30분간 검화시켰다. 검화 후 n-hexane으로 PAHs를 추출하여 N_2 gas로 추출액을 건조시키고 acetonitrile 1 ml에 용해시켜 High Performance Liquid Chromatography-FL(Detector 3013, shiseido, Japan)로 분석하였다(Table 1).[19] PAHs 분석을 위

Table 1. Condition for HPLC analysis of PAHs in foods

Column	Supelcosil LC-PAH column(25cm×4.6cm) with C_{18} Guard column		
Detector	Fluorescence(Detector 3013, *shiseido)*		
Flow Rate	1ml/mi		
Solvent System	Min	Acetonitrile(%	
		50%	100%
	Initial	40	60
	10	0	100
	35	0	100
	40	40	60
Wavelength (Em/Ex)	Min	nm(Em/Ex*)	
	0.0-18.5	267/384	
	18.5-32.5	290/410	
	32.5-40.0	293/498	

*Em : Emission wavelength; Ex : Excitation wavelength

한 컬럼은 supelguard LC-18(supelco, USA)와 LC-PAH colume(2.5 cm × 4.6 mm I.D., sum, supelco, USA)을 사용하였다.

ii) 콜라와 우유를 제외한 식품분석

500 ml 플라스틱수기에 시료 30 g을 담아 2M KOH/MeOH-Water(9:1, v/v) 100 ml와 Na_2S 2 g을 가하여 2시간 동안 환류를 시키면서 70°C에서 검화 한 후 n-hexan 100 ml을 첨가한 15분 후 증류수 100 ml를 첨가하여 하룻밤 동안 정치하였다. Hexane 층의 50 ml을 취하여 N_2 gas로 추출액을 건조시킨 후 acetonitrile 1ml에 용해시켜 High Performance Liquid Chromatography-FL(Detector 3013, shiseido, Japan)로 분석하였다.[18] PAHs 분석을 위한 컬럼은 콜라와 우유 분석과 동일시하였다.

PAHs 화합물 인체노출평가

독성등가량(Toxic Equivalents, TEQ_{BaP}) 산출 - 분석결과 얻어진 개별 PAHs 화합물 오염도에 benzo(a)pyrene에 상응하는 값으로 전환하는 상대독성계수(toxic equivalency factors, TEFs)는 Nisbet & Lagoy의 값(Table 2)을 활용하여 TEQ_{BaP} 값을 산출하였다(Equation 1).[20]

Equation 1)

$$TEQ_{BaP}(ugTEQ_{BaP}/kg) = \sum_{i=1}^{n}(Cij) \times TEFj$$

i: Number of food commodity considered in one meal.

j: Number of PAH congener occurred in edible food commodity.

C_{ij}: Concentration of congener*j* in food commodity*i* (ug/kg)

TEF_j: Toxic equivalency factors using for converting individual PAH congener*j* level into TEQ_{BaP}

TEQ_{BaP}: Benzo(a)pyrene equivalents adjusted TEFs value ($ugTEQ_{BaP}/kg$)

끼니별 가정식과 외식 식단의 PAHs 화합물 인체노출량 (PAHs dietary intakes) 산출 – 가정식과 외식식사를 통해 섭취하는 끼니별 PAHs 화합물 인체노출량은 우리나라 60 kg 성인(국민체위조사보고서, 1998)[23]을 대상으로 하였고, 오염수준을 반영하는 식품별 TEQ_{BaP} 값과 1인 1회분(one serving size)식품섭취량(식품별영양성분분석자료, 2003)[22]을 활용하여 산출하였다(Equation 2).

Equation 2)

PAHs dietary intake per one meal

$$= \sum_{i=1}^{n} \frac{(\sum_{i=j}^{n} Cij \times TEFj) \times IRi}{BW} (ugTEQ_{BaP}/kg/meal)$$

i: Number of food commodity considered in one meal.

j: Number of PAH congener occurred in edible food commodity.

C_{ij}: Concentration of congener*j* in food commodity*i* (ug/kg).

TEF_j: Toxic equivalency factors using for converting individual PAH congener*j* level into TEQ_{BaP}

IR_i: Amount of one serving size per one meal of food commodity*i* (g/meal).

BW: Body weight of adult (60kg).

1일 3회 식사를 고려한 PAHs 화합물 인체노출량(Daily PAHs dietary intake) 산출

국민건강영양조사보고서에 따른 성인 하루 식사패턴에서의 가정식과 외식비율을 2 : 1로 고려하였을 때[16], 본 연구에서 산출한 4종류의 가정식 식단에서 2회, 4종류의 외식 식단에서 1회 식사를 기준으로 순열조합방식을 활용하여 1일 3회 식사를 통한 PAHs 화합물 인체노출량을 산출하였다.

Table 2. Toxic Equivalency Factors using for converting individual PAH congener level into TEQ_{BaP}[21]

Congener	TEF	Congener	TEF
Naphthalene	0.001	Benzo(a)anthracene	0.100
Fluorene	0.001	Benzo(b)fluoranthene	0.100
Phenanthrene	0.001	Benzo(k)fluoranthene	0.100
Anthracene	0.010	Benzo(a)pyrene	1.000
Fluoranthene	0.001	Dibenzo(a,h)anthracene	5.000
Pyrene	0.001	Benzo(g,h,i)perylene	0.010
Chrysene	0.010	Indeno(1,2,3-c,d)pyrene	0.100

TEQ_{BaP} : Toxic Equivalents; TEF : Toxic Equivalency Factor

결과 및 고찰

가정식과 외식 식단

우리나라 대표식품 중 밥류 1종, 빵류 1종, 국류 2종, 찌개류 1종, 구이류 9종, 부침류 1종, 볶음류 6종, 튀김류 1종, 나물류 2종, 생채류 1종, 김치류 3종, 우유 및 유제품류 1종, 음료류 1종, 과일류 4종, 생채소류 1종, 조리가공식품류 1종을 포함한 총 36종을 근거로 작성한 가정식과 외식은 Table 3과 같다.

식품 중 PAHs 오염도

조리된 식품과 비조리 식품의 PAHs 화합물 오염도 차이 – 모델식이방법에 활용된 36종 식품을 대상으로, 14종의 PAHs 화합물 오염도를 분석한 결과, 멸치볶음 141.28 ug/kg, 계란말이 86.04 ug/kg, 햄버거 64.46 ug/kg 숯불쇠고기구이 64.21 ug/kg 순으로 높게 검출되었으며, 콜라를 제외한 식품의 PAHs 화합물 오염도는 2.00 ug/kg~63.98 ug/kg 수준이었다(Fig. 1). 가장 높은 PAHs 화합물 오염도를 나타낸 멸치볶음은 유류 유출사고로 인한 해양오염과 가공·유통 과정 중 PAHs 화합물이 축적되거나, 조리과정시 유지사용으로 유기물의 불완전연소와 열분해 등에 의해서 식품 내에 PAHs 화합물이 생성되었다고 사료되어진다. 해양환경영양조사보고

Table 3. Home cooking menu and dining out menu considering primary foods consumed in large amount by Koreans

	Home cooking menu	Dining out menu
A	Loaf bread Cow's milk Fried sausage Fried bacon Pan-fried eggroll Stir-fried onion Apple	Cooked rice Oven baked chicken Sea mustard soup Pan-fried eggroll Baechu kimchi Chicken radish Citrus
B	Cooked rice Soy bean paste pot-stew Broiled mackerel Stir-fried fish paste Fried ham Baechu kimchi Persimmon	Cooked rice Barbecued beef Soy bean paste pot-stew Stir-fried anchovy Seasoned bean sprout Lettuce Green onion kimchi Apple
C	Cooked rice Sea mustard soup Broiled yellow corvinal Stir-fried anchovy Green onion kimchi Stir-fried oyster mushroom Pear	Hamburger Fast food french-fry Coke
D	Cooked rice Bean-spout soup Fried bean curd Seasoned spinach Stir-fried potato Kakdugi Citrus	Cooked rice Barbecued pork Sea mustard soup Stir fried oak-mushroom Stir-fried fish paste Lettuce Green onion kimchi

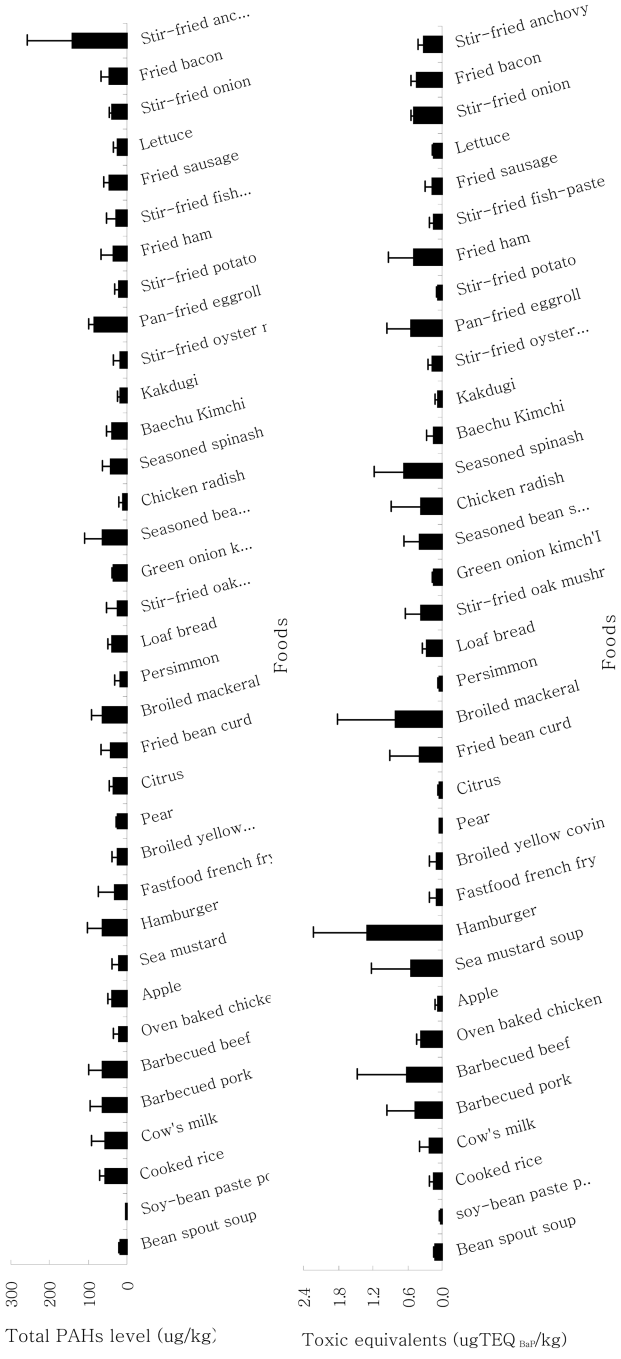

Fig. 1. Total PAHs level and Total TEQ_{BaP} level of primary foods consumed in large amount by Korean.

서에[25] 따르면 해저퇴적물 층에 0.01 ug/kg~2.2 ug/kg 수준의 PAHs 화합물 오염도가 측정되어 이를 뒷받침하고 있다. 김[10]의 연구에 의하면 신선한 대두유 가열시 가열 전보다 benzo(a)pyrene이 더 높게 검출되었으며, 같은 온도에서 가열시간이 길수록, 같은 시간에서 가열온도가 높을수록 benzo(a)pyrene의 오염도는 증가하는 것으로 보고되어, 유지를 사용한 식품의 PAHs 화합물 오염도가 높다는 것을 알 수 있었다. 오염도가 높게 나타난 조리방법이 볶음과 구이류인 것으로 보아, 직접적으로 열에 많이 노출되는 식품 일수록 PAHs 화합물 오염도가 높게 나타났다. 채소와 과일의 PAHs 화합물은 주로 공기오염의 미립자 퇴적에 의해 일반적으로 과육보다는 과일의 껍질과 채소의 겉껍질 등 표면에서 더 높게 검출되었으며, 특히 채소는 잎 표면적이 넓은 상추, 케일, 시금치 등이 가장 많이 오염된 것으로 조사되었다.[14] Monica 등,[14] Lodovici 등,[12] Larsson 등[26]이 분석한 상추의 총 PAHs 오염도는 각각 13.53 ug/kg, 2.61 ug/kg, 26 ug/kg~50 ug/kg이었고, 본 연구는 25.07 ug/kg이 검출되었다. 모유나 우유에서 PAHs 화합물 오염도가 검출된 보고가 있는데, 인디아 여성의 태반과 모혈, 그리고 모유에서 benzo(a)pyrene과 chrysene 등이 검출되었으며, 일본도 모유에서 0.19~2.15 ug/kg이 검출되었다. 일본과 스페인, 영국에서 분석한 우유에서 7종의 발암성물질이 모두 검출되었고, benzo(a)pyrene이 0.01~0.03 ug/kg 수준으로 나타났다. 본 연구에서의 우유도 7종의 발암성 PAHs 화합물 중 chrysene을 제외한 6종이 검출 되었으며, 그 중 benzo(a)anthracene이 0.61 ug/kg으로 가장 높게 검출되었고, benzo(a)pyrene은 다른 나라와 비슷한 0.01 ug/kg으로 나타났다.

식품 중 개별 PAHs 화합물 오염도 패턴 – 분석 식품에서 개별 PAHs 화합물 오염도 분포를 살펴보면 naphthalene과 fluoranthene이 각각 561.1 ug/kg(40.06%)과 552.9 ug/kg(39.48%)으로 다른 화합물에 비해 높게 분석되었다. PAHs의 대표독성물질인 benzo(a)pyrene의 농도는 햄버거에서 0.52 ug/kg(28.41%)으로 가장 높게 검출이 되었고, 오븐닭고기구이 0.28 ug/kg(15.30%), 햄구이 0.13 ug/kg(7.10%), 숯불삼겹살구이 0.10 ug/kg(5.46%), 베이컨구이 0.10 ug/kg(5.46%)순으로 검출되었다. 열에 많이 노출되는 조리방법 중 구이와 볶음류의 개별 PAH 화합물 생성 패턴을 살펴보았을 때, 구이류는 fluoranthene과 naphthalene이 각각 19.21(±10.01) ug/kg(45%), 13.50(±11.50) ug/kg(30%)으로, 볶음류는 fluorene과 pyrene이 각각 21.11(±32.13) ug/kg (41%), 16.69(±11.35) ug/kg(32%)로 다른 개별 PAH 화합물보다 높게 검출되었다(Fig. 2). 14종의 PAHs 화합물 중 저분자성 PAHs 화합물(∑≤3 rings PAHs) 4종과 고분자성 PAHs 화합물(∑≥4 ring PAHs) 10종의 상대적인 오염도 비율은 고분자성 PAHs가 46.77%으로 절반이하를 차지하고 있는 것으로 나타났다. 고분자성 PAHs 화합물 10종 중 7종은 발암성물질로, 대기 중에 휘발하지 않고 식품표면에 흡착되어 인체로 유입할 가능성이 큰 것으로 보고되고 있다.[27]

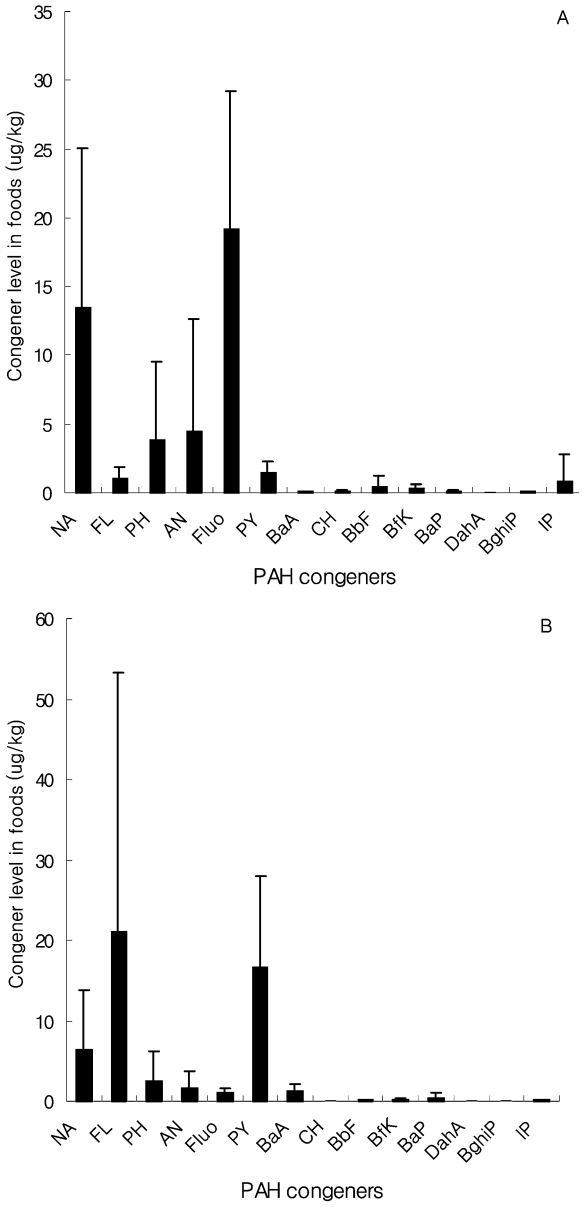

Fig. 2. Distribution of individual PAH congener in foods according to cooking methods A:Fried food group; B: Stir-fried group.

식품 중 PAH 화합물 인체노출평가

PAHs 화합물의 독성등가량 - 상대독성계수를 적용하여 환산한 식품별 독성등가량은 햄버거가 1.31 ugTEQ$_{BaP}$/kg, 고

등어구이 0.81 ugTEQ$_{BaP}$/kg, 시금치나물 0.67 ugTEQ$_{BaP}$/kg, 숯불쇠고기구이 0.54 ugTEQ$_{BaP}$/kg 순으로 산출되었다 (Fig. 1). 독성등가량의 개별 PAHs 화합물 분포를 살펴보면 대부분 식품에서 indeno(1,2,3-c,d)pyrene, benzo(a)pyrene, dibenzo(a,h)anthracene 순으로 높게 나타났으며, 3종의 총 독성등가량은 각각 3.32 ugTEQ$_{BaP}$/kg(30.46%), 1.82 ugTEQ$_{BaP}$/kg(16.70%), 1.76 ugTEQ$_{BaP}$/kg(16.61%)이였다. Indeno(1,2,3-c,d)pyrene은 고등어구이에서 0.60 ugTEQ$_{BaP}$/kg (17.85%), benzo(a)pyrene은 햄버거에서 0.518 ugTEQ$_{BaP}$/kg(28.49%), dibenzo(a,h)anthracene은 숯불삼겹살구이에서 0.45 ugTEQ$_{BaP}$/kg(25.59%)으로 가장 높게 나타났다. PAHs 화합물 오염도와 독성등가량의 식품 순위 변동을 살펴보면, 멸치볶음, 콩나물무침, 쌀밥, 우유, 소시지구이 등의 PAHs 화합물 오염도는 높았으나, 상대독성계수로 환산한 독성등가량은 낮게 나타났다. 이는 총 PAHs 화합물 중 발암성 PAHs 화합물 함량이 낮기 때문으로 사료된다. 반면, 미역국과 시금치나물은 PAHs 화합물 오염도가 낮아도 독성등가량이 높아, 발암성 PAHs 화합물 함량이 높은 것을 알 수 있었다. 계란말이와 햄버거, 숯불쇠고기구이, 고등어구이, 숯불삼겹살구이 역시 총 PAHs 화합물 오염도 뿐만 아니라 독성

Table 4. The PAHs dietary intakes per one meal from home cooking menu and dining out menu

	Home cooking menu			Dining out menu		
	Foods	Food intake[12)] (g/meal)	Dietary intake (ug/kg/meal)	Foods	Food intake (g/meal)	dietary intake (ug/kg/meal)
A	Loaf bread	70	3.3×10^{-4}	Cooked rice	210	4.9×10^{-4}
	Cow's milk	200	7.0×10^{-4}	Oven-baked chicken	150	1.3×10^{-3}
	Fried sausage	40	1.2×10^{-4}	Sea mustard soup	200	1.8×10^{-3}
	Fried bacon	20	1.5×10^{-4}	Pan-fried eggroll	50	4.5×10^{-4}
	Pan-fried eggroll	50	4.5×10^{-4}	Baechu kimchi	50	1.3×10^{-4}
	Stir-fried onion	25	2.1×10^{-4}	Chicken radish	50	3.2×10^{-4}
	Apple	200	2.7×10^{-4}	Citrus	100	1.0×10^{-4}
	Total	615	2.2×10^{-3}	Total	810	4.6×10^{-3}
B	Cooked rice	210	4.9×10^{-4}	Cooked rice	210	4.9×10^{-4}
	Soy-bean paste pot-stew	250	1.2×10^{-4}	Barbecued beef	200	2.0×10^{-3}
	Broiled mackerel	80	1.1×10^{-3}	Soy-bean paste pot-stew	250	1.2×10^{-4}
	Stir-fried fish-paste	40	1.0×10^{-4}	Stir-fried anchovy	15	8.0×10^{-5}
	Fried ham	40	3.3×10^{-4}	Seasoned bean-sprouts	50	3.3×10^{-4}
	Baechu kimchi	50	1.3×10^{-4}	Lettuce	40	9.0×10^{-5}
	Persimmon	80	5.0×10^{-5}	Green onion kimchi	50	1.1×10^{-4}
				Apple	200	2.7×10^{-4}
	Total	750	2.3×10^{-3}	Total	965	3.0×10^{-3}
C	Cooked rice	210	4.9×10^{-4}			
	Sea mustard soup	200	1.8×10^{-3}			
	Broiled yellow corvina	100	1.8×10^{-4}	Hamburger	180	3.9×10^{-3}
	Stir-fried anchovy	15	8.0×10^{-5}	Fast food french fry	150	2.8×10^{-4}
	Green onion kimchi	50	1.1×10^{-4}	Coke	480	0
	Stir-fried oyster-mushroom	50	1.4×10^{-4}			
	Pear	100	6.0×10^{-5}			
	Total	725	2.9×10^{-3}	Total	810	4.2×10^{-3}
D	Cooked rice	210	4.9×10^{-4}	Cooked rice	210	4.9×10^{-4}
	Bean-spouts soup	250	5.0×10^{-4}	Barbecued pork	200	1.5×10^{-3}
	Fried bean curd	80	5.2×10^{-4}	Sea mustard soup	200	1.8×10^{-3}
	Seasoned spinach	50	5.6×10^{-4}	Stir-fried oak mushroom	50	3.1×10^{-3}
	Stir-fried potato	50	7.0×10^{-5}	Stir-fried fish-paste	40	1.0×10^{-3}
	Kakdugi	50	6.0×10^{-5}	Lettuce	40	1.0×10^{-4}
	Citrus	100	1.0×10^{-4}	Green onion kimchi	50	1.1×10^{-4}
	Total	790	2.3×10^{-3}	Total	790	4.4×10^{-3}
Average			2.4×10^{-3}	Average		4.0×10^{-3}

등가량도 높아 발암성 PAHs 화합물 함량이 높음을 알 수 있었다.

끼니별 가정식과 외식 식단의 PAHs 화합물 인체노출량 비교 – 우리나라 성인 평균 체중과 1인 1회분식품섭취량을 PAHs화합물 오염도에 적용하여 산출한 끼니별 가정식과 외식의 PAHs 화합물 평균인체노출량은 각각 2.4×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/day, 4.0×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/day으로 외식이 가정식 보다 1.7배 높은 노출량을 나타냈다(Table 4).

4종류로 설정한 가정식 인체노출량은 2.2×10^{-3}~2.9×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal 수준으로 가정식C가 가장 높게 산출되었다. 미역국의 인체노출량은 1.8 ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(21%)으로, PAHs 화합물 오염도는 낮지만 독성등가량과 1회분식품섭취량이 다른 식품에 비해 높아 가정식C 뿐만 아니라 가정식 전체 식품에서 가장 높은 노출기여도를 나타냈다. 그 다음으로 고등어구이 1.1×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(12%), 우유 7.0×10^{-4} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(8%), 시금치나물 6.0×10^{-4} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(6%), 두부구이 5.0×10^{-4} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(6.02%), 콩나물국 5.0×10-4 ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(5.7%) 등의 순서로 노출기여도가 높게 나타났다.

외식에서 4종류 식단의 인체노출량은 3.0×10^{-3}~4.6×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal 수준으로 외식A가 가장 높게 산출되었다. 외식A에서는 가정식C에서와 같이 미역국이 가장 높은 노출기여도를 나타냈지만, 외식 전체 식품 중에서는 햄버거가 가장 높은 노출기여도를 나타냈다. 햄버거는 미역국 인체노출량의 2배 이상인 3.9×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(30%)로 PAHs 화합물 오염도 뿐 만 아니라 독성등가량과 1회분식품섭취량 모두 높아 PAHs 화합물의 주요 노출기여식품인 것을 알 수 있었다. 햄버거 다음으로 숯불쇠고기구이 2.0×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(16%), 미역국 1.8×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(14%), 숯불삼겹살구이 1.5×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(12%), 오븐닭고기구이 1.3×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal(10%) 순으로 노출기여도를 나타냈다. 인체노출량 산출시 식품오염도로 활용하는 독성등가량은 햄버거와 고등어구이, 숯불쇠고기구이, 미역국, 숯불삼겹살구이, 시금치나물 등에서 높을 뿐 아니라 1회분식품섭취량도 많아 PAHs 화합물 인체노출량이 높게 산출되었다. 오븐닭고기구이, 우유, 콩나물국 등은 독성등가량이 낮아도, 1회분식품섭취량이 많아 PAHs 화합물 인체노출량은 높게 산출되었지만, 햄구이, 양파볶음, 베이컨구이 등은 독성등가량이 높아도 1회분식품섭취량이 다른 식품보다 작기에 인체노출량은 낮게 산출되었다.

1일 3회 식사를 고려한 1일 PAHs 화합물 인체노출평가 – 성인하루 식사패턴인 가정식 2회와 외식 1회를 참고로 본 연구에서 작성한 4종류의 가정식 중 2회와 4종류의 외식 식단 중 1회 식사를 기준으로 순열조합을 이용하였을 때, 하루 3회 식사의 경우의 수는 24 가지였다. 산출된 각 조합들의 개별 1일 PAHs 화합물 인체노출량 범위는 8.0×10^{-3}~9.7×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/day 수준이었다(Table 5). 우리나라 서울 외 5대도시의 대기를 통한 PAHs 화합물의 1일인체노출량(환경부, 1999)은 1.8×10^{-6} mgTEQ$_{BaP}$/kg/day이였고, 본 연구에서 성인 하루 식사패턴을 통한 1일인체노출평균값은 8.8×10^{-6} mgTEQ$_{BaP}$/kg/day로써 PAHs 화합물의 주요인체노출경로인 호흡노출과 경구섭취를 고려하였을 때, 총 인체노출량 중 식품섭취를 통한 인체노출수준은 80% 이상으로 유추되었다. 이는 나라별 식이섭취를 통한 PAHs 화합물 노출수준과 비슷하였다.[30]

본 연구에서는 우리나라 사람들의 식생활을 고려한 모델식이방법을 활용하여 가정식과 외식 식단에서의 PAHs 화합물 인체노출량을 비교평가하였다. 그 결과 외식이 가정식보다 PAHs 화합물의 노출량이 1.7배가 높게 나타났으며, 햄버거, 숯불쇠고기구이, 숯불삼겹살구이, 고등어구이 등은 PAHs 화합물 오염도와 독성등가량, 1회식품섭취량이 모두 높아 PAHs 주요노출식품인 것을 알 수 있었다. 이것으로 PAHs에 노출기여식품이 가정식보다는 외식에 더 많은 부분을 차지하고 있음을 알 수 있었다. 성인의 하루 식사 패턴을 고려한 가정식과 외식에서의 1일인체노출량은 8.2×10^{-3}~9.6×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/day 수준이였다. 공기, 물, 토양 등을 통해 노출되는 PAHs 화합물은 사람들이 의도적으로 피할 수 없지만, 식품을 통한 PAHs 화합물 노출은 개개인의 노력에 의해서 줄일 수 있다. 과거에 비해 외식문화가 점점 증가하고 있으므로 가정식 이외의 외식을 통하여 노출될 수 있는 인체위해물질에 대한 정보습득과 반복섭취에 의한 고노출상황을 피할 수 있는 계획된 식습관의 필요성을 제시하고 있다. 뿐만 아니라, 외식산업에서는 소비자를 위해 식품안전성에 대한 인식이 필요하겠다.

Table 5. The daily PAHs dietary intake calculated by permutations and combinations with assumption that a person has two meals from the home cooking and the one meal from the dining menu out per a day (unit : ugTEQBaP/kg/day)

		One meal from dining menu			
		a	b	c	d
Two meals from home cooking menu	AB	9.1×10^{-3}	8.0×10^{-3}	8.7×10^{-3}	9.0×10^{-3}
	AC	9.6×10^{-3}	8.6×10^{-3}	9.3×10^{-3}	9.5×10^{-3}
	AD	9.1×10^{-3}	8.0×10^{-3}	8.7×10^{-3}	9.0×10^{-3}
	BC	9.7×10^{-3}	8.7×10^{-3}	9.4×10^{-3}	9.6×10^{-3}
	BD	9.2×10^{-3}	8.2×10^{-3}	8.8×10^{-3}	9.1×10^{-3}
	CD	9.7×10^{-3}	8.7×10^{-3}	9.4×10^{-3}	9.6×10^{-3}

*the lowest level **the highest level
I. ABCD: Home-cooking II. abcd: Dining-out

국문요약

PAHs 화합물은 유기탄소화합물의 불완전연소에 의해 주로 발생하는데, 일반인들은 대기오염에 의한 호흡노출과 가열조리식품의 경구섭취가 주요 인체노출경로로 알려지고 있다. 본 연구에서는 PAHs 화합물에 오염된 식품이 식생활에 많은 부분을 차지하고 있어 우리나라 대표식품을 참고로 가정식과 외식의 식단을 작성하고 작성한 식단을 근거로 식품 중 PAHs 화합물 오염도를 분석하여, 분석된 PAHs 화합물의 오염도 자료를 활용한 가정식과 외식 1끼 식사를 기준으로 인체노출량을 비교하고, 성인 하루 가정식 2회, 외식 1회 섭취시의 1일인체노출량을 평가하였다. 다빈도・다소비식품에서 PAHs 화합물 오염도를 분석한 결과 총 PAHs 농도는 2.00~141.28 ug/kg의 범위로 검출되었으며, 멸치볶음이 가장 높게 나타났다. 상대독성계수(TEFs)를 활용하여 환산한 독성등가량은 0.03~1.31 ugTEQ$_{BaP}$/kg 범위였고, 가장 높은 값을 가진 식품은 햄버거이었다. 식품별 오염도와 노출변수들을 고려하여 산출한 끼니별 가정식과 외식에서의 PAHs 화합물 평균인체노출량은 각각 2.4×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal와 4.0×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal으로 외식이 가정식보다 PAHs 화합물의 인체노출이 1.7배가 높은 수준으로 나타났다. 햄버거, 숯불쇠고기구이, 숯불삼겹살구이, 고등어구이 등은 PAHs 화합물 오염도와 독성등가량 및 1회분식품섭취량이 모두 높아 PAHs 화합물의 주요 노출기여식품인 것을 알 수 있었다. 가정식에서 미역국이 1.8×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal으로, 외식에서는 햄버거가 3.9×10^{-3} ugTEQ$_{BaP}$/kg/meal으로 기여도가 가장 높았다. 하루 3회 식사를 고려한 1일 PAHs화합물인체노출량수준은 8.0×10^{-3}~9.7×10^{-3} ug/kg/day 이었다. 본 연구 결과가 PAHs 화합물의 안전성평가와 기준규격설정의 필요성 및 식품안전관리를 위한 규제를 제정하는 기초 자료가 되길 바라며, PAHs 화합물의 고노출상황을 줄일 수 있는 개개인의 계획된 식단 작성시, 이에 대한 정보를 제공하고자 한다.

참고문헌

1. Pelkonene, O., Nebet, D.W.: Metabolism of polycyclic aromatic hydrocarbons. *Etiological Role in Carcinogenesis Pharmacol Rev.*, **43**, 189~222 (1982).
2. Gelboin, H.V.: Benzo(a)pyrene metabolism, activation, and carcinogenesis Role and regulation of mixed-function oxidases and related enzymes. *Physiol Rev.*, **60**, 1107-1166 (1980).
3. DHHS/ATSDR, Toxicological Profile for Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) (1995).
4. American Conference of Governmental Industrial Hygienists, Inc. Documentation of the Threshold Limit Values and Biological Exposure Indices. 6th ed. Volumes I, II, III. Cincinnati, OH: ACGIH, 125 (1991).
5. Klaassen, C.D.: Casarett and Doull's Toxicology. The Basic Science of Poisons. 6th ed. New York, NY: McGraw-Hill, 668 (2001).
6. Rom, W.N.: Environmental and Occupational Medicine. 2nd ed. Boston, MA: Little, Brown and Company, 877 (1992).
7. International Agency for Research on Cancer (IARC): monographs on the evaluation of the carcinogenic risk of chemicals to humans Vol.32, polyunclear aromatic compounds, part I. chemical. Environmental and experimental data (1983).
8. U.S. National Academy of Science: PAH-evaluation of sources and effects 477 (1983).
9. WHO/IPCS selected Non-heterocyclic polycyclic aromatic hydrocarbons. Environmental health criteria 202 (1998).
10. 김인숙, 안명수, 장대경: 유지가열시 Benzo(a)pyrene 생성에 관한 연구, *한국조리과학회지*, **9**(4), 323~332 (1993).
11. Howord, J.W., Fazio, T.: ,Review of Polycyclic aromatic hydrocarbons in food. Analyrical methology and reported findings of polycyclic aromatic hydrocarbons in foods. *Journal of the Association of offical analytical chemists* **63**, 1077 (1980).
12. Lodovici, M., Dolara, P., Casalini, C., Ciappellano, S., & Tesolini, G.: Polycyclic aromatic hydrocarbon contaminantion in the Italian food. *Food Additives and contaminants*, **12**(5), 703~713 (1995).
13. 이효민, 윤은경, 박경아: 식품 중 Polycyclic aromatic hydrocarbons의 위해성평가 *한국식품위생안전성학회지*, **19**(1), (2004).
14. Monica, C., Rojo, Camargo., Maria, C., Toledo, F.: Polycyclic aromatic hydrocarbons in brazilian vegetables and fruits. *Food Control* 14, 49~53 (2003).
15. 보건복지부, 1998년도 국민건강영양조사보고서, 한국산업진흥원 (1999).
16. 보건복지부, 2001년도 국민건강영양조사보고서, 한국산업진흥원 (2002).
17. 한국보건산업진흥원, 한국인의 대표식단 중 오염물질 섭취량 및 위해도 평가(2003).

18. Chen, B., Wang, C., Chiu, C.: Evaluation of analysis of polycyclic aromatic aromatic hydrocarbons in meat products by liquild chromatography. *J. agric. Food Chem*. **44**, 2244~2251 (1996).
19. Naoy, K., Mitsuhio, W., Naotaka, K., Syuzo, A.: Determination of Polycyclic aromatic hydrocarbons in milk samples by high-performance liquid chromatographywith fluorescence detection. *Journal of Chromatography* B **789**, 257~264 (2003).
20. Tsai, P., Shieh, Y., Lee, J., Lai, S.: Health-risk assessment for workers exposured to polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in a carbon black manufacturing industry. *The Sci. Total Env* **278**, 137~150 (2001)
21. Nisbet, C., Lagoy, P.: Toxic Equivalency Factors(TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). *Reg. Toxicol. Pharmacol*. **16**, 290~300 (1992).
22. 보건복지부, 식품별 영양성분 분석자료의 데이터베이스 추가구축 사업결과보고서 (2000).
23. 국립기술품질원, 국민표준체위조사보고서, 한국표준과학연구원 (1998).
24. 통계청, 통계연구보고서 lifetime table (1999).
25. 이종협: 여수 여천 해양환경영향보사 2차년도 최종보고서, 서울대학교 환경안전연구소 (1999).
26. Larsson, B., Sahlberg, G: Polycyclic aromatic hydrocarbons in lettuce: infuence of a highway and an aluminium smelter. Sixth international symposium on physical and biological chemistry, Columbus, Ohio (1981).
27. Steven, D., Colome, N., Kado. Y., Peter, J., Michael, K.: *Atmos Environ* **26**(4), 2173~2178 (1992).
28. U.S.EPA. Risk Assessment guidance for superfund. Vol 1. Human health evaluation manual(Part A). Interim Final. EPA/540/1-89-002. Office of Emergency and Remedical Response. U.S. Environmental Protection Agency (1989).
29. 한국식품과학회편, 식품과학용어집 대광서림 (1994).
30. Gemma, F., Jose, L., Juan, M., Angel, T., Conrad, C., Lutz, M.: Polycyclic aromatic hydrocarbons in foods : Human exposure through the diet in catalonia, *Spain. Journal of food protection* **66**, 2325~2331 (2003).