

일부 한국 성인 여성들의 혈중 내분비계 장애물질 농도 및 그 노출요인의 연구

민선영[†] · 정문호
서울대학교 보건대학원

The Concentrations of Endocrine Disrupter(PCBs and DDE)in the Serum and Their Predictors of Exposure in Korean Women

Sun Young Min[†] and Moon Ho Chong

Department of Environmental Public Health, Graduate School of Public Health, Seoul National University
(Received 28 May 2001 ; Accepted 20 June 2001)

ABSTRACT

Polychlorinated biphenyls(PCBs) are halogenated aromatic compounds with the empirical formula $C_{12}H_{10-n}Cl_n$ ($n=1 \sim 10$), and are a mixture of possible 209 different chlorinated congeners. PCBs were widely used as dielectric fluids for capacitors and transformers, plasticizers, lubricant inks and paint additives. Once released into the environment, PCBs persist for years because they are so resistant to degradation. In addition to their persistence in the environment, PCBs in ecological food chains undergo biomagnification because of their high degree of lipophilicity. In 1970s, the worldwide production of PCBs was ceased and the import of PCBs was prohibited since 1983 in Korea. In spite of these actions, many PCBs seem to be still in use. The environmental load of PCBs will continue to be recycled through air, land, water, and the biosphere for decades to come. This study was conducted to measure the concentrations of PCBs in the serum samples of 112 women by GC/MSD and GC/ECD.

The main results of this study were as follows.

1. PCBs were detected in all samples. The mean \pm SD levels of PCBs in the serum were 3.613 ± 0.759 ppb, and median were 3.828 ppb.
2. The correlation coefficients of the concentrations of 13 PCB congeners were from minimum, 0.7913 to maximum, 0.9985, and all was significant($p=0.0001$). The correlation coefficient between the concentrations of PCBs and p,p'-DDE was 0.9641($p=0.0001$).
3. There was a positive association between age and PCBs' concentrations (simple linear regression ; $R^2=0.86$, $\hat{\beta}=0.08023$, $p<0.001$).
4. There was a positive association between total lipids in the serum and PCBs' concentrations (simple linear regression ; $R^2=0.7058$, $\hat{\beta}=0.00486$, $p<0.001$).
5. For possible predictors of PCBs and p,p'-DDE levels in the serum, age adjusted model ($Y=\beta_0+\beta_1age+\beta_2X$) was applied. For BMI, major residential area, whether to eat caught fish by angling, whether to eat caught fish by angling(by parents in the past), fish consumption, meat consumption, and dairy consumption, there was no association. For total conception frequency and lactation period, there was negative association.

Keywords : PCBs, p,p'-DDE, serum, predictor, concentration

I. 서 론

최근 들어 환경에 널리 퍼져있는 다양한 화합물들이 호르몬 수용체(hormonal receptors)에 결합하여

에스트로젠성, 항에스트로젠성, 안드로젠성, 또는 항안드로젠성 영향을 나타낸다는 가설이 제기되고 있다.¹⁾ DDT와 그 대사체인 DDE, PCBs, dioxin과 같은 유기염소계 화합물 등의 환경 에스트로젠성 화합물들(Environmental estrogen xenoestrogen)은 다양한 종(Species)에서의 성적 발달(sexual development)과 연관성이 있는 것으로 밝혀져 남성에서는 소아의 생식기형의 증가, 정자수 감소 등의 생식력 저하, 생식기 관련 암의 증가를 유발하고^{2,3)}, 여성의 경우 유

[†]Corresponding author : Department of Environmental Public Health, Graduate School of Public Health, Seoul National University.
Tel : 02-712-3756, Fax : 02-3672-1140
E-mail : erica@snu.ac.kr

방암, 생식기관련 암의 증가를 일으키는 것으로 보고되고 있으며⁴⁾, 또한 태반 내에서 이와 같은 화학물질의 고폭로는 성장기 지능 발달의 저하를 가져온다는 보고도 있다.⁵⁾

이러한 유기염소계 화합물은 오랫동안 자연계에 축적되어 동물성 식품(지방, 생선, 우유 등)을 통하여 지속적인 폭로로 인체의 지방조직에 침착된다.

유기염소계화합물의 인체영향에 대한 대표적인 연구로 Wolff, Krieger, Hunter 등의 연구를 들 수 있는데, 아직은 혈중 PCBs, DDE농도와 유방암 발생과의 연관성에 대하여 일관된 결과를 보이지 않아 유기염소계 화합물이 유방암을 유발한다는 가설은 아직 많은 논란의 대상이 되고 있다.⁶⁻⁸⁾

Laden⁹⁾ 등은 Nurses Health Study의 연구대상자 중 여성 240명의 혈중 PCBs, DDE 농도의 결정요인들(predictors)을 조사한 결과, 연령, 지역, 혈중 콜레스테롤 수치 등이 가장 유의한 요인들로서 나타났으며, 생선 섭취와 PCBs 농도 사이에서도 연관성을 발견하였다.

또한, Jensen¹⁰⁾ 등은 Ontario 지역 거주민 232명의 혈중 PCB, p,p' -DDE 농도의 결정요인들을 조사한 결과, 오대호의 물고기와 물새(waterfowl) 섭취여부의 연관성이 유의하게 나타났다.

Davis¹¹⁾ 등이 스웨덴의 Baltic해에서 생선섭취를 많이 하는 여성의 정맥혈에서의 PCBs농도를 분석한 결과, PCB-153 농도만이 생선섭취와 약한 연관성을 보였다. 이태리의 Lawrence¹²⁾ 등은 유산으로 입원한 120명의 여성과 분만을 한 대조군 120명의 여성의 혈중 PCBs농도를 비교한 결과, 유산 여성에서 더 높은 PCBs농도가 발견되었지만, 식품섭취는 PCBs농도를 증가시키는 요인으로 유의하게 나타나

지 않았다.

따라서 생선섭취량이 비교적 많은 우리나라의 경우, 혈중 PCBs농도의 결정요인으로써 생선섭취 등식이패턴에 대한 조사와 거주력, 직업력, 수유력, 임신력 등에 대한 연구가 필요하다고 생각된다.

환경시료중 PCBs의 잔류성은 1966년 스웨덴의 Jensen박사가 가물치 체내에서 PCBs가 축적되어 있는 것을 최초로 확인하면서 사람들에게 알려지기 시작했다.¹³⁾ 1960년대 이후 수많은 연구결과 PCBs는 하천수, 호소수, 강물등 수질시료와 토양, 저니토 등 전세계 다양한 환경시료에서 검출되었으며 환경시료 뿐 아니라 플랑크톤, 물고기, 새, 계란, 가축 체내 심지어 산모의 모유 등 다양한 생물체내에서 검출보고되어 왔다.¹⁴⁻¹⁵⁾

자연환경에서 PCB, p,p' -DDE화합물의 잔류량에 대한 연구보고에 비해서 생체시료에서의 잔류량에 대한 국내 연구보고는 거의 없는 실정이다.

이에 본 연구에서는 생체시료에 축적되어 있는 고독성의 PCB, p,p' -DDE화합물의 잔류량 평가를하고자 한다.

그리고, 일부 성인여성들을 대상으로 거주력, 직업력, 출산력, 수유력, 식이습관 등에 대해서 조사하는 설문지를 만들어서 설문조사를 통해서 PCBs 및 p,p' -DDE의 노출경로에 대한 결정요인을 규명해보고자 한다.

II. 연구대상 및 실험방법

20세 이상의 건강한 일반 성인 여성 112명에게 연구참여동의를 받아 연구대상으로 하였다.

Table 1. PCBs' Proposed Toxic Equivalent Factor (TEF) values

IUPAC	Congener	TEF value	Relative Potency range
<Coplanar PCBs>			
126	3,4,5,3,4-PeCB	0.1	0.3-0.006
169	3,4,5,3,4,5-HxCB	0.05	0.01-0.0012
77	3,4,3,4-TCB	0.01	0.009-0.00008
<Mono ortho coplanar>			
118	2,4,5,3,4-PeCB	0.001	0.0004-0.000006
105	2,3,4,3,4-PeCB	0.001	0.008-0.00006
123	3,4,5,2,4-PeCB	0.001	0.00013-0.000018
114	2,3,4,5,4-PeCB	0.001	0.000045-0.000074
157	2,3,4,3,4,5-HxCB	0.001	0.00045-0.000014
156	2,3,4,5,3,4-HxCB	0.001	0.0004-0.000065
167	2,4,5,3,4,5-HxCB	0.001	0.000055
189	2,3,4,5,3,4,5-HpCB	0.001	no data available

2. 혈중 PCBs, DDE 분석 방법

1) 시료 수집

피검자에게서 vacutainer에 채취한 혈액 10cc를 전혈로부터 혈청을 분리해내기 위해서 1500 rpm, 4°C에서 25분동안 원심분리시킨 다음에, 상층액만을 teflon-lined cap이 달린 시험관에 취해서 -25°C에서 밀봉냉장 보관하였다.

2) 시료의 전처리⁶⁾ (AOAC method)

원심분리해서 분리해 낸 혈청에 n-Hexane 10 ml와 무수 Na₂SO₄ 5g을 가해서 혼합한 다음, seperatory funnel에서 유기층만 분리해내었다. Methanol 3 ml을 가한 다음 Vortex mixer에서 mixing을 시킨 다음, hexane-ethyl ether(1:1) 5 ml을 가한 다음 다시 Vortex mixer에서 mixing을 시켰다. 다시 rotary mixer에서 20분간 50 rpm에서 mixing시킨 다음에 원심분리를 시켰다. 상층액인 유기층만을 분리해낸 다음, 다시 위와 같은 과정을 2회 반복하였다. 3회에 걸쳐 분리해낸 용액들을 합친 다음에, nitrogen gas stream으로 1 ml이 남을 때까지 건조시켰다. teflon-lined syringe에 Florisil catridge(Sep-Pak Plus Florisil Catridge, Waters)를 연결한 다음에, n-hexane 2 ml을 통과시킨 후, 11 ml ether로 용출시켰다. 초기 유출액 2~3 ml는 버리고 나머지 유출액을 모아서 순수한 nitrogen gas를 사용하여 1 ml이 남을 때까지 건조시킨 다음 가스크

로마토그래피 분석시료로 준비하였다. 이러한 과정을 도식화하여 <Fig. 1.>과 같이 나타내었다.

3) 표준용액 중 PCBs 분석

① 표준물질 및 시약 (Standards and Reagents)

PCBs의 개개 congener specific analysis를 위한 PCB congeners 13개 (Table 1)의 100ppm standards를 Cambridge Isotope Laboratories, Inc(영국)로부터 각각 구입해서 사용하였다.

본 연구에서 구입한 PCB congener들은 TEF (Toxic Equivalent Factor) value(U.S. EPA, 1994a)를 근거로 독성등가가 높은 PCB congener들을 선정하였다.

Hexanes(n-hexane, 95%, CH₃(CH₂)₄CH₃, F.W.86.18, J.T.Baker), MeOH(99.9%, CH₃OH, F.W.32.04), Iso-octane((CH₃)₃CCH₂CH(CH₃)₂, 99.8%, F.W. 114.23, Fisher Scientific), Petroleum ether(99.8%, MALLINCKRODT Chemical)등 모든 solvent들은 HPLC grade 시약을 사용하였다.

② 분석기기 및 분석조건

생체시료로부터 PCBs를 분석하기 위해 GC/ECD (Hewlett Packard 5890 series-II gas chromatography (GC)-ECD(Electron Capture Detector), U.S.A)와 GC/MSD(Hewlett Packard 5890 series-II gas chromatography)를 사용하였으며(이하 GC/ECD) 분석에 이용한 column은 HP-5이다.

각 PCBs의 congener들의 Retention time을 확인하기 위해서 GC/MS(Hewlett Packard 5890 series II gas chromatography (GC)와 5971 Mass Selective Detector(이하 GC/MSD), U.S.A)를 사용

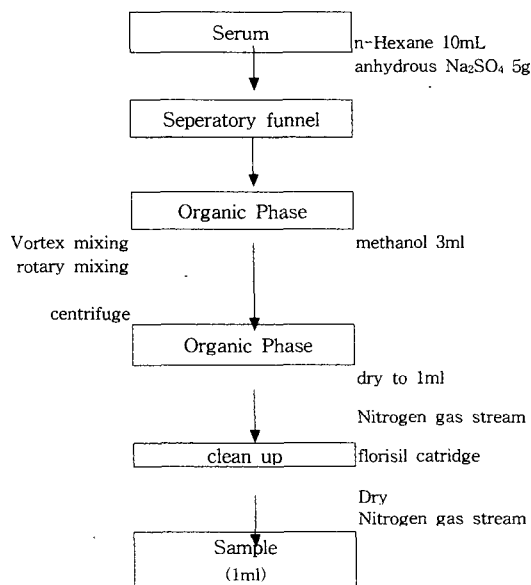


Fig. 1. PCBs & p,p'-DDE Assay Scheme for serum.

Table 2. PCB congeners and IUPAC No

PCB	IUPAC Number
3,3', 4,4' -Tetrachlorobiphenyl	77
3,3', 4,4', 5-Pentachlorobiphenyl	126
3,3', 4,4', 5,5' -Hexachlorobiphenyl	169
3,4,4', 5-Tetrachlorobiphenyl	81
2,3,3', 4,4' -Pentachlorobiphenyl	105
2,3,4,4', 5-Pentachlorobiphenyl	114
2,3', 4,4', 5-Pentachlorobiphenyl	118
2', 3,4,4', 5-Pentachlorobiphenyl	123
2,3,3', 4,4', 5-Hexachlorobiphenyl	156
2,3,3', 4,4', 5,5' -Heptachlorobiphenyl	189
2,3,3', 4,4', 5' -Hexachlorobiphenyl	157
2,3', 4,4', 5,5' -Hexachlorobiphenyl	167
2,2', 3,4', 5,5', 6-Heptachlorobiphenyl	187

하였다.

PCB화합물의 정량분석은 monochlorobiphenyl, dichlorobiphenyl, trichlorobiphenyl, tetrachlorobiphenyl, pentachlorobiphenyl, hexachlorobiphenyl, heptachlorobiphenyl, octachlorobiphenyl이 각각 1 mg/l 농도로 혼합된 PCB화합표준물질의 GC/ECD 상대감응도(Relative response factor)를 각각 구하고 크로마토그램에서 분리된 각각의 PCB화합물을 찾아 Peak area에 의하여 농도를 산출한 다음, 합산함으로써 총 PCB농도를 구하였다. 또 한편으로는 4~5 mg/l

마토그램을 비교 정량하며, GC-ECD에서 나온 각 피크들을 GC-MSD를 이용하여 확인하였다. 본 연구에서 적용한 GC-ECD와 GC-MSD 조건은 Table 3, 4와 같다.

4) Congener별 검량선 작성 및 정량 분석

각각의 PCBs congeners 13개의 농도가 0.0, 0.02, 0.5, 1.0, 5.0 ppb가 되도록 표준용액을 준비한 다음 동일한 전처리 방법(2.(2) 참조)에 따라 전처리하였다. 그 다음 각각의 검량선을 작성하였다.

Table 3. GC/ECD-Operation condition for Analysis of PCBs

Analytical Condition											
Column	HP-5(Cross-linked 5% phenylmethyl siloxane Film thickness:0.5 μ m, Length:30 m, Phase ratio:160, Column I.D:0.32 mm)										
Carrier gas	N ₂										
Split ratio	Splitless										
Injection port temp.	250 $^{\circ}$ C										
Detection port temp.	250 $^{\circ}$ C										
Oven temp. program	<table border="1"> <thead> <tr> <th>Initial temp.($^{\circ}$C)</th> <th>Initial time (min)</th> <th>Rate($^{\circ}$C/min.)</th> <th>Final temp. ($^{\circ}$C)</th> <th>Final time(min)</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>80</td> <td>1</td> <td>5.0</td> <td>300</td> <td>25</td> </tr> </tbody> </table>	Initial temp.($^{\circ}$ C)	Initial time (min)	Rate($^{\circ}$ C/min.)	Final temp. ($^{\circ}$ C)	Final time(min)	80	1	5.0	300	25
Initial temp.($^{\circ}$ C)	Initial time (min)	Rate($^{\circ}$ C/min.)	Final temp. ($^{\circ}$ C)	Final time(min)							
80	1	5.0	300	25							

인 Aroclor 표준물질의 크로마토그램과 시료의 크로

Table 4. GC/MSD-Operation condition for Analysis of PCBs

Analytical Condition					
Column	HP-5MS(Cross-linked 5% phenylmethyl siloxane 30 m \times 0.25 mm I.D. \times 0.25 μ m F.T.)				
Carrier gas	He at 0.77 ml/min				
Split ratio	1/10				
Injection port temp.	300 $^{\circ}$ C				
Transfer line temp.	300 $^{\circ}$ C				
Oven temp. program	initial temp. ($^{\circ}$ C)	initial time (min)	rate($^{\circ}$ C/min)	final temp. ($^{\circ}$ C)	final time(min)
	140	1	3	230	0
			8	300	5
SIM mode (Solvent delay;3.5 min)	Group	Start time (min)	Selected Ions		
	1	3.5	154, 153, 188, 190, 222, 224		
	2	10.3	222, 224, 256, 258, 290, 292		
	3	15.9	256, 258, 290, 292, 326, 328		
	4	20.8	290, 292., 326, 328, 360, 362		
	5	27.9	326, 328, 360, 362, 394, 396		
	6	31.9	360, 362, 394, 396, 426, 428, 460, 462, 498, 500		

Table 5. Recovery rate of PCBs

Sample	Concentration	No. of Sample	recovery rate
			mean \pm S.D.(%)
PCB-77	5 μ g/L	5	95.8 \pm 2.8
	10 μ g/L	5	96.1 \pm 1.5
PCB-126	5 μ g/L	5	95.1 \pm 3.7
	10 μ g/L	5	93.8 \pm 2.5

5) 회수율 측정

혈중 PCBs의 회수율을 측정하고자 PCBs standards 13종류 중 PCB #77과 PCB #126을 선택하여 각각 5 μ g/L와 10 μ g/L 용액을 5개씩 만들어 앞서 제시한 전처리 방법(2.(2) 참조)에 따라 처리하였다. 그 결과 얻은 PCBs의 회수율(mean \pm S.D.)은 Table 5와 같다.

6) 혈중 PCB 농도의 Predictor에 관한 조사

연령, 신체중실지수 (body mass index; BMI, kg/m²), 거주력, 직업력, 출산력, 수영력, 유산 경험유무, 식이관련(지난 한달 간의 육류, 어류, 야채류 섭취횟수 및 양을 설문조사해서 그 사람의 총 섭취량을 근사적으로 추정함) 등 가능한 노출요인에 대해서 설문 조사를 실시하며, 혈중 콜레스테롤 및 Triglyceride 수치를 측정하였다.

7) 통계 분석

PCBs의 농도에 대해 평균농도와 표준편차를 제시하였다. 혈중 PCBs 농도와 가능한 Predictor와의 연관성 고찰에서는 먼저 그래프를 제시하였으며, 상관 분석(correlation analysis), 회귀분석(regression analysis)을 이용하여 검정하였다.

III. 연구 결과

1. 혈중 PCBs, DDE 농도

총 112명의 PCB congeners와 p,p'-DDE의 농도의 평균치를 Table 6에 나타내었다.

PCB congeners의 평균농도는 3.6128 \pm 0.7592였으며, p,p'-DDE의 평균농도는 3.7657 \pm 0.8335였다.

PCB와 p,p'-DDE 분포는 모두 약간 높은 쪽으로 치우친 것을 알 수 있는데, 연령의 분포와 비슷한 양상을 보이고 있음을 알 수 있다.

PCB congeners 중에서 3,4,4',5-TetraPCB의 농도가 월등히 높은 값을 보였으며, Tetra, Penta, Hexa, Hepta의 순서로 농도가 낮아지는 양상을 보였다.

PCB의 13개 congeners의 농도 사이에 상관계수(Pearson Correlation Coefficients)는 최소 0.7913에서 최대 0.9985까지였으며, 모두 유의하였다($p=0.0001$). PCB congener의 농도의 합계와 p,p'-

Table 6. Concentrations of PCBs congeners & p,p'-DDE

		Mean	SD	Percentile				
				0	25	50	75	100
Te tra	3,3',4,4' -Tetra(77)	0.4625	0.0527	0.333	0.411	0.471	0.486	0.564
	3,4,4',5-Tetra(81)	1.0708	0.1329	0.708	0.9395	1.099	1.134	1.316
	Tetra	1.5333	0.1841	1.110	1.350	1.570	1.620	1.880
Pe nta	3,3',4,4',5-Penta(126)	0.3392	0.1028	0.120	0.288	0.384	0.416	0.488
	2,3,3',4,4' -Penta(105)	0.0895	0.0273	0.031	0.0756	0.1008	0.1094	0.1288
	2,3,4,4',5-Penta(114)	0.1268	0.0399	0.23	0.106	0.144	0.156	0.183
	2,3',4,4',5-Penta(118)	0.5088	0.1582	0.034	0.4385	0.576	0.625	0.737
	2',3,4,4',5-Penta(123)	0.1716	0.0525	0.059	0.149	0.194	0.208	0.255
P	Penta	1.2359	0.3790	0.324	1.0591	1.3993	1.5138	1.7918
C B	3,3',4,4',5,5' -Hexa(169)	0.2023	0.0557	0.052	0.164	0.2185	0.240	0.295
	2,3,3',4,4',5-Hexa(156)	0.1020	0.0275	0.034	0.082	0.1065	0.122	0.15
	2,3,3',4,4',5' -Hexa(157)	0.0508	0.0135	0.017	0.041	0.054	0.061	0.073
	2,3',4,4',5,5' -Hexa(167)	0.1523	0.0406	0.051	0.123	0.162	0.183	0.219
	Hexa	0.5075	0.1367	0.17	0.41	0.5425	0.606	0.733
He pta	2,2',3,4',5,5',6-Hepta(187)	0.0916	0.0256	0.045	0.072	0.094	0.111	0.148
	2,3,3',4,4',5,5' -Hepta(189)	0.2445	0.0687	0.12	0.1935	0.253	0.296	0.383
	Hepta	0.3361	0.0943	0.165	0.2655	0.3465	0.407	0.513
Total PCB Con.		3.6128	0.7592	1.851	3.0431	3.8282	4.0612	4.8558
p,p'-DDE		3.7657	0.8335	1.95	3.125	3.985	4.195	5.11

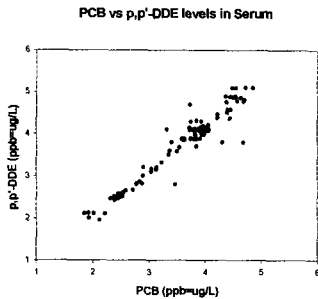


Fig. 3. Correlation between PCB and p,p'-DDE levels in Serum.

DDE의 농도 간의 상관계수도 0.9641로 상관관계가 높았다($p=0.001$). 따라서, PCB의 농도분포와 p,p'-DDE의 농도분포는 비슷한 양상을 보이고 있다. 이 관계를 그림으로 나타내면 <Fig. 3.>과 같다.

2. 혈중 PCBs, DDE농도와 노출경로의 결정요인에 대한 분석결과

1) 연구대상자의 일반적 특성

본 연구의 연구대상자 112명에 대한 일반적 특성

(연령, 직업력, 거주력)은 다음의 Table 7, 8과 같다.

2) 임신 및 수유

출산과 유산(자연유산과 인공유산의 합)을 합한 총 임신회수의 경우, Table 9와 같이 3회가 37명인 33.6%로 가장 많았으며, 5회인 경우가 110명 중 23명인 20.9%, 2회인 경우가 17명인 15.5%, 4회인 경우가 16명인 14.5%의 순이었으며, 6회 이상인 경우가 9명인 8.1%, 1회인 경우가 8명인 7.3%로 낮았다. 모유수유여부에서는 '예'라고 대답한 경우가 109명중 88명인 80.7%를 차지하였으며, '아니오'라고 대답한 사람이 21명인 19.3%를 차지하였다.

수유한 사람의 수유기간에 대한 평균, 표준편차와 분포양상은 Table 10과 같다.

3) 식이사항

식에 대한 조사는 생선류와 육류, 유제품 세 가지에 대하여 지난 한달동안의 섭취빈도와 한번 섭취할 때 섭취하는 양을 조사하였다. 섭취빈도에 있어서 '안먹음'인 경우에 0점, '월 1회'일 경우에 1점, '월

Table 7. General characteristics of the Subjects

Characteristics	Category	N	N
Age(years)	20~29	6	5.4
	30~39	31	27.7
	40~49	52	46.4
	50~59	20	17.9
	60~69	3	2.7
Marital Status	Unmarried	4	3.6
	Married	108	96.4
Family Income(× 10 ³ won)	<100	4	3.6
	100~199	19	17.0
	200~299	42	37.5
	300<=	47	42.0
Educational Level	Illiteracy	1	0.9
	Elementary School	2	1.8
	Middle School	7	6.3
	High School	50	44.6
	College	46	41.1
	Graduate School	6	5.4
Alcohol	Yes	26	23.6
	No	84	76.4
Smoking	Yes	4	3.6
	Stopped	3	2.7
	No	105	93.8
BMI(kg/m ²)	<20	16	14.3
	20~25	79	70.5
	25~30	17	15.2
Total		112	112

Table 8. Residence and duration of residence

	Category	Duration(year)						χ^2 -Test
		N	15<	15~25	25~35	35~45	45<	
Hometown	rural	54(48.2)	13(24.1)	24(42.6)	15(27.8)	2(3.7)	1(1.-)	^a $\chi^2=21.319$ p=0.006
	coastal	1(0.89)	-	1	-	-	-	
	industrial	-	-	-	-	-	-	
	urban	57(50.9)	7(12.3)	11(19.3)	19(33.3)	11(19.3)	9(15.8)	
	Subtotal	112(100)	20(17.9)	35(31.3)	34(30.4)	13(11.6)	10(8.9)	
major residential area	rural	37(33.0)	6(16.2)	13(35.1)	15(40.5)	5(5.4)	1(2.70)	^b $\chi^2=7.222,$ p=0.125
	coastal	-	-	-	-	-	-	
	industrial	1(0.89)	1	-	-	-	-	
	urban	74(66.1)	9(12.2)	18(24.3)	24(32.4)	14(18.9)	9(12.2)	
	Subtotal	112(100)	16(14.3)	31(27.7)	39(34.8)	16(14.3)	10(8.9)	

a : when rural and coastal is united as one category

b : when industrial and urban is united as one category

Table 9. Conception & Lactation

Characteristics Category	N	%
Conception	1	7.3
	2	15.5
	3	33.6
	4	14.5
	5	20.9
	6<=	8.1
Subtotal	110	100
Lactation	Yes	80.7
	No	19.3
	Subtotal	109

Table 10. Total Duration of Lactation

	N	Mean	SD	Percentile				
				0	25	50	75	100
Duration of Lactation(month)	89	18.8	19.9	0	7	14	23	111

2~3회' 일 경우에 2점, '주 1회' 일 경우에 3점, '주 2~3회' 일 경우에 4점, '주 4~6' 회일 경우에 5점, '매일 1회' 일 경우에 6점, '매일 2회 이상' 일 경우에 7점을 부여하였고, 섭취량의 세 수준에 대하여 각각 1점, 2점, 3점을 부여하였으며, 총량은 이 두 값을 곱하여 산출하였다. 생선류(Fish)는 바다생선, 민물고기류, 오징어·낙지·문어류, 조개·굴류, 통조림류(참치, 꽂치, 고등어 통조림)의 총량을 합한 것이며,

Table 11. Basic Statistics of Fish, Meat and Dairy Consumption

	N	Mean	SD	Percentile				
				0	25	50	75	100
Fish	111	14.6	7.8	1	9	13	18	42
Meat	112	12.5	4.9	3	9	12	15	30
Dairy	106	13.7	7.9	1	8	13	19	40

육류(Meat)는 돼지고기, 쇠고기, 닭고기, 육류가공식품, 계란의 총량을 합하였으며, 유제품류(Dairy)는 우유, 요플레, 치즈, 버터의 총량을 합하였다.

생선류, 육류, 유제품류의 섭취빈도와 양은 Table 11과 같다.

4) PCBs, DDE 농도와 그 결정요인들과의 관계

PCB Levels in Serum vs Age

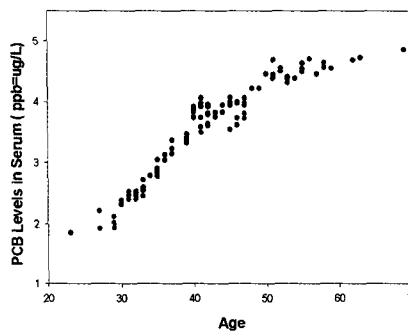


Fig. 4. PCBs levels in Serum vs Age

p,p'-DDE Levels in Serum vs Age

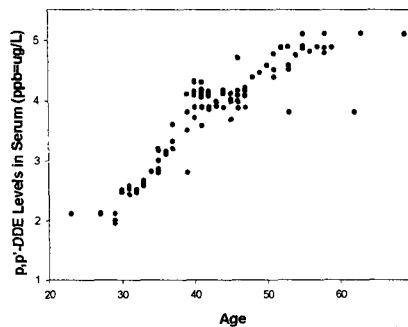


Fig. 5. p,p'-DDE levels in Serum vs Age

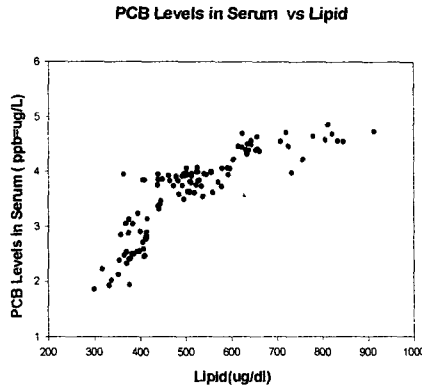


Fig. 6. PCBs in Serum vs Lipid

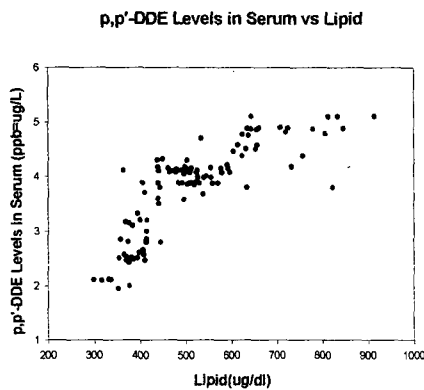


Fig. 7. p,p'-DDE levels in Serum vs Lipid

연령이 증가할수록 PCB의 농도가 비례해서 증가하고 있는 형태를 보이고 있으며 (Simple Linear Regression: $R^2=0.8560$, $\hat{\beta}=0.080231$, $p=0.0001$), p,p'-DDE의 경우도 비슷한 경향을 보이고 있다 (Simple Linear Regression: $R^2=0.7931$, $\hat{\beta}=0.084781$, $p=0.0001$). 55세 이상의 고연령층에서는 증가율이 감소하는 형태를 띠고 있다.

연령과 농도의 관계를 그래프로 나타내면 <Fig. 4.>와 같다.

또한, 혈중 지질의 농도가 높을 수록 PCB의 농도가

비례해서 증가하고 있으며 (Simple Linear Regression: $R^2=0.7058$, $\hat{\beta}=0.004859$, $p=0.0001$), p,p'-DDE의 경우도 비슷한 경향을 보이고 있다 (Simple Linear Regression: $R^2=0.6574$, $\hat{\beta}=0.005149$, $p=0.0001$). 이 경우에도 연령의 경우와 마찬가지로 600 ug/dl 이상에서는 농도 수준을 일정하게 유지하는 형태를 띠고 있다.

BMI(body mass index), 성장지, 총임신 회수, 수유여부, 수유기간, 낚시한 물고기 섭취여부, 생선섭취, 육류섭취, 유제품섭취와 PCB, p,p'-DDE의 농도와의 연관성을 알아보기 위해 연령을 보정한 회귀분석을 적용하였다.

연령보정한 모델은 $Y=\beta_0+\beta_1age+\beta_2X$ 와 같다.

연령을 보정한 결과, PCB의 농도에 있어서는 수유기간이 증가함에 따라 농도가 감소하는 추세를 보였다 ($R^2=0.8688$, $\hat{\beta}=-0.003188$, $p=0.0474$). p,p'-DDE의 농도에 있어서는 총 임신회수와 수유기간이 증가함에 따라 농도가 감소하는 추세를 보였다 (각각 $R^2=0.7912$, $\hat{\beta}=-0.050154$, $p=0.0499$; $R^2=0.8117$, $\hat{\beta}=-0.006052$, $p=0.0043$). 이 결과는 출산력과 수유력이 길수록 체내의 PCB와 p,p'-DDE가 배설(excretion)이 많이 되었다는 것을 의미하는 것으로 생각된다.

연령을 보정하고 주요거주력을 농촌지역과 도시지역으로 구분한 경우와 수유여부, 낚시한 물고기 섭취여부, 부모님이 낚시한 물고기의 섭취여부에 대하여 회귀분석을 실시한 결과 수유여부에 따른 p,p'-DDE의 농도만이 유의한 차이를 보였다 ($R^2=0.7930$, $\hat{\beta}=-0.1859$, $p=0.0432$). 위 네 가지 변수에 대해 PCB, p,p'-DDE 농도값과 연령을 제시하면 Table 12와 같다.

PCB 및 p,p'-DDE의 농도를 결정하는 요인 중 가장 큰 것은 연령과 지질의 농도이며, 임신횟수와 수유기간이 증가할수록 감소하는 경향을 보였다. 반면, BMI, 거주력, 식이요인과 PCB 및 p,p'-DDE의 농도

Table 12. PCBs p,p'-DDE, age by possible predictors

X	Category	N	PCB		p,p'-DDE		Age	
			Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD
major residential area	Rural(0)	37	3.7005	0.7323	3.8092	0.7706	43.3	8.44
	Urban(1)	75	3.5695	0.7733	3.7443	0.8671	41.9	8.93
lactation	No(0)	24	3.7712	0.6465	4.0075	0.7583	44.0	8.09
	Yes(1)	83	3.5340	0.7948	3.6612	0.8514	41.6	8.98
wether to eat caught fish by angling	No(0)	96	3.6117	0.7573	3.7630	0.8261	42.5	8.96
	Yes(1)	16	3.6195	0.7960	3.7819	0.9047	41.6	7.63
wether to eat caught fish by angling(by parents in the past)	No(0)	101	3.6120	0.7706	3.7602	0.8410	42.3	8.86
	Yes(1)	11	3.6202	0.6779	7.8164	0.7974	43.5	8.04

의 연관성은 뚜렷하게 나타나지 않았다. 또한 일반적인 특성들도 유의한 차이를 나타내지 않았다.

IV. 고 찰

근래에는 PCB화합물들의 독성연구에서 각각의 PCB화합물들의 독성등가계수(Toxic Equivalency Factor)가 염소가 함유된 개수나 같은 분자식을 갖는 PCB라도 PCB분자의 구조적 특성에 의하여 수배에서 수만배 이상 차이가 있음이 밝혀진 다음에 PCB의 농도측정은 독성등가계수(TEQ)가 큰 화합물에 더 큰 관심을 갖거나, 각각의 PCB화합물의 농도를 측정 한 후 독성등가계수(TEQ)로 환산하여 표시하기도 한다.

환경중 배출된 PCBs는 congeners의 구조적 특성에 따라 분해 혹은 대사속도에 차이가 있는 것으로 알려져 있는데 일반적으로 biphenyl에 치환된 염소개수가 증가할수록 수질에서 저니토, 토양으로 그리고 나아가 물고기나 가축 등 생물체내로의 생물농축이 잘 일어나는 것으로 알려져 있다. 따라서 이와 같이 congener별로 분해속도나 생체전이속도등 환경중 동태(environmental impacts)가 다르기 때문에 환경시료중 검출되는 PCBs의 pattern은 PCBs 단일 표준품의 pattern과 다른 경우가 많다. 이런 경우는 pattern-comparison시 PCBs의 단일 표준품 대신 혼합 표준품과의 pattern-comparison을 통하여 total PCBs량을 정량하고 있다.^{16,18-19)}

Congener-specific analysis는 최근 PCBs의 독성에 대한 연구가 활발히 진행되면서 새로이 그 방법상의 중요성이 더해가고 있는 정량법이다. 이론적으로 가능한 PCBs congener는 209종이며 이중 실제로 환경시료중 검출되고 있는 congener들은 약 100여종인데 각 congener별 독성은 구조적 특성에 따라 차이가 있는 것으로 알려져 있다.

PCBs 독성에 대한 구조-활성 관계(structure-activity relationships:SARS)를 연구한 결과를 보면 PCBs의 생화학적 반응 및 독성반응은 염소치환(chlorine substitution) pattern들에 따라 큰 차이가 있는 것으로 나타났다.

2,3,7,8-TCDD(tetrachlorodibenzodioxine)의 isomer라 할 수 있는 3,3',4,4'-tetraCB(IUPAC No. 77)와 3,3',4,4',5-pentaCB(IUPAC No. 126), 3,3',4,4',5,5'-hexaCB(IUPAC No. 169) 등의 non-ortho coplanar PCBs 및 2,3,3',4,4'-pentaCB(IUPAC No.105)와 2,3,3,4,4',5-

hexaCBs(IUPAC No. 156), 2,3,4,4',5-pentaCBs(IUPAC No. 118) 등의 mono-ortho coplanar PCBs가 독성이 큰 congener로 밝혀졌는데 이들 coplanar PCBs들은 AHH(aryl hydrocarbon hydroxylase) 활성 및 EROD(ethoxyresorufin O-deethylase) 활성을 나타내며 TCDD에 견줄만한 독성(TCDD-like toxicity)을 나타내는 것으로 알려졌다. 이와 같이 이들 coplanar PCBs는 생화학적 활성 및 독성에 있어 PCDFs(polychlorinated dibenzofurans) 및 PCDDs(polychlorinated dibenzo-p-dioxins)등 다른 HACs(Halogenated Aromatic Compounds)와 유사한 특성을 나타내기 때문에 PCB에 대한 독성평가 또한 이들 coplanar PCBs를 중심으로 하여 PCDDs 및 PCDFs 등의 독성평가에 사용되는 TCDD toxic equivalents(TEQ : TEQ = \sum concentration of congener \times TEF)에 의해서 이루어지고 있다.²⁰⁻²⁵⁾

이들 coplanar PCBs에 대한 2,3,7,8-TCDD toxicity equivalency factors(TEFs) 값은 독성실험 결과에 따라 큰 차이를 보이고 있는데 일례로 3,3',4,4',5-pentaCB 및 3,3',4,4',5,5'-hexaCB등에 대해서 최근 제시된 TEF의 평균값(mean \pm S.D.)은 0.19 \pm 0.22 및 0.053 \pm 0.089이며²⁴⁾ 기존에 발표되었던 여러 독성 연구결과 자료를 종합하여 Safe²⁴⁾가 최근 제시한 coplanar PCBs의 TEF는 다음과 같다:

3,3',4,4',5-pentaCB, 0.1; 3,3',4,4',5,5'-hexaCB, 0.05; 3,3',4,4'-tetraCB, 0.01; 2,3,3',4,4',5-hexaCB, 0.0003; 2,3,4,4',5-pentaCB, 0.00005; 2,3,4,4',5-pentaCB, 0.0002.

또한, 환경시료중 PCBs 잔류에 대한 최근 연구결과에 의하면 이들 고독성 congener들은 다른 congener들 보다 훨씬 더 생물농축이 잘 되며 따라서 PCBs 잔류분석의 total toxic potency가 먹이연쇄에 의해 더욱 증가되는 것으로 알려져 있다.²⁰⁾

이와 같이 congener별로 환경 중 잔류성과 생물농축성, 독성 등에 차이가 있기 때문에 정확한 PCBs의 잔류 및 위해성 평가를 위해 Total PCBs의 잔류량 평가 뿐만 아니라 congener별 잔류량 평가가 보다 중요하게 요구되고 있다.^{20,24)}

국내 환경시료 중 PCBs의 잔류평가는 1980년 박창규 등이 산업폐수가 흐르는 전담토를 대상으로 PCBs의 잔류평가를 수행하였으나 PCBs의 잔류를 확인할 수 없었다. 그러나 이후 1982년 박창규 등이 수원서호에서 채취호소수, 저니토 및 봉어를 대상으

로 수행하여 PCBs를 검출한 바 있으며 1995년 김정호 등이 금강 저니토를 대상으로 수행하여 PCBs의 잔류성을 확인한 바 있다.²⁶⁻²⁸⁾

그러나 이상의 연구에서는 모두 PCBs를 perchlorination시켜 decachlorobiphenyl (DCB)로 전환시켜 분석함으로써 다른 유기염소계화합물에 의한 간섭을 배제할 수 없어 정확한 정량이 될 수 없었으며 또한 그 결과로써는 각 congener별 잔류분포의 특성을 알 수 없었다.

본 연구에서 혈중 PCBs와 DDE농도는 연령이 증가함에 따라, 또 혈중 지질의 농도가 높을수록 증가하였다. 총임신 회수와 수유기간이 증가할수록 농도가 낮아지는 결과를 보였다. 이것은 excretion이 되어 혈중 농도가 감소된 것으로 생각된다.

그러나, BMI, 성장지, 낚시한 물고기 섭취여부, 생선섭취, 육류섭취, 유제품섭취와 PCB, p,p' -DDE의 농도와의 연관성은 뚜렷하지 않았다.

연령에 따라 농도가 증가하는 원인을 생각해 보면, 노출기간이 길수록 축적이 되어 잔류농도가 증가하였다고 생각된다. 이번 연구에서는 식이형태를 조사하기 위한 방법으로 지난 한달 동안 섭취한 음식에 대해서 기억에 의존한 설문지를 통한 방법을 사용하였는데, 이 방법으로는 정확한 측정이 이루어지기 힘들었다고 생각된다. 좀더 정확한 식이형태를 조사하고 농도와의 연관성을 살펴보는 연구가 이루어져야 할 것으로 생각된다.

V. 결 론

환경에스트로젠성 화합물로 알려져있는 PCBs와 DDE는 자연계 내에 오래 잔류하며, 체내로 유입될 경우 지방조직 등에 침착된다. 우리나라의 경우 체내의 PCBs와 DDE의 양을 측정하거나, 그 유입경로를 예측하는 논문이 거의 없는 실정이다. 이에 본 연구에서는 체내의 PCBs와 DDE를 측정하는 방법을 적용하고 그 양을 평가하며, 그 농도의 예측인자를 여러 가지 측면에서 찾아보았다.

본 연구에서는 congener-specific analysis를 적용하여 종합건강증진센터에서 일반건강검진을 받은 건강한 일반 성인 여성 112명의 혈중농도를 측정한 결과 PCBs의 평균농도는 3.613 ppb \pm 0.759 ppb, p,p' -DDE의 평균농도는 3.766 ppb \pm 0.834 ppb였으며 PCBs의 농도분포와 비슷하였다.

혈중 PCBs와 DDE농도는 연령이 증가함에 따라, 또 혈중 지질의 농도가 높을수록 증가하였다. 총임신

회수와 수유기간이 증가할수록 농도가 낮아지는 결과를 보였다. 따라서, 혈중 PCBs와 p,p' -DDE의 predictor는 연령, 혈중 지질의 농도, 임신횟수, 수유기간으로 나타났다.

그러나, BMI, 성장지, 낚시한 물고기 섭취여부, 생선섭취, 육류섭취, 유제품섭취와 PCB, p,p' -DDE의 농도와의 연관성은 뚜렷하지 않았다.

참고 문헌

- 1) Giwercman A, Carlsen E, Keiding N, Skakkebaek NE. : Evidence for increasing of abnormalities of the human testis : A review, *Enviro Health Perspec*, 101(suppl.2), 65-713. 1, 1993
- 2) Carlsen E, Giwercman A, Keiding N, Skakkebaek N.E. : Evidence for decreasing quality of semen during past 50 years, *Br Med J*, 305 : 609-13, 1992.
- 3) Sharpe R.M., Skakkebaek N.E. : Are oestrogens involved in falling sperm counts and disorders of the male reproductive tract?, *Lancet*, 341 : 1392-5, 1993.
- 4) Sharara F.I., Seifer D.B., Flaws J.A. : Environmental toxicant and female reproduction, *Fertil Steril*, 70 : 613-224, 1998.
- 5) Jacobson J.L., Jacobson S.W. : Intellectual impairment in children exposed to polychlorinated biphenyls in utero, *N Engl J Med*, 335 : 783-9, 1996.
- 6) Wolff M.S., Toniolo P.G., Lee E.W., Rivera M, Dubin L. : Blood levels of organochlorine residues and risk of breast cancer. *JNCI*, 85 : 648-52.6, 1993.
- 7) Krieger N, Wolff M.S., Hiatt R.A., Rivera M, Vogelman J, Orentreich N. : Breast cancer and serum organochlorines : a prospective study among white, black, and Asian women. *JNCI*, 86 : 589-99, 1994.
- 8) Hunter DJ, Hankinson SE, Laden F, Colditz CO, Manson JE, Willett WC, Speizer FE, Wolff MS, Plasma Organochlorine levels and the risk of breast cancer, *British Medical Journal*, 88 : 577-588, 1994.
- 9) Laden F et al., Predictors of plasma Concentrations of DDE and PCBs in a Group of

- U.S. Women ; Environ Health Perspect, 107 : 75-81, 1999.
- 10) Jensen S., Report of a New Chemical Hazard : New. Scientist, 32 : 612, 1996.
 - 11) Davis DL, Telang NT, Osborne MP, Bradlow HL. Medical hypothesis : Bifunctional genetic-hormonal pathways to breast cancer. Environ Health Perspect 105(suppl 3) : 571-614, 1994.
 - 12) Lawrence J, Tosine HM, Polychlorinated Biphenyl Concentrations in Sewage and Sludges of Some Waste Treatment Plants in Southern Ontario. Bull. Environ. Contam. Toxicol., 17(1) : 49-56, 1977.
 - 13) Alford-Stevens. A. L. Analyzing PCBs. Environ. Sci. Technol., 20 : 1194-120016, 1986.
 - 14) Kok AD, Geerdink RB, Frei RW, et al. The Use of Dechlorination in the Analysis of Polychlorinated Biphenyls and Related Classes of Compounds. Intern. J. Environ. Anal. Chem., 9 : 301-31817, 1981.
 - 15) Lawrence J, Tosine HM, Polychlorinated Biphenyl Concentrations in Sewage and Sludges of Some Waste Treatment Plants in Southern Ontario. Bull. Environ. Contam. Toxicol., 17(1) : 49-56, 1977.
 - 16) Kok AD, Geerdink RB, Frei RW, et al. The Use of Dechlorination in the Analysis of Polychlorinated Biphenyls and Related Classes of Compounds. Intern. J. Environ. Anal. Chem., 9 : 301-31817, 1981.
 - 17) Kok AD, Geerdink RB, Frei RW, et al. Limitations in the Use of Perchlorination as a Technique for the Quantitative Analysis of Polychlorinated Biphenyls. Intern. J. Environ. Anal. Chem., 11 : 17-41, 1982.
 - 18) Webb RG, Mc Call AC. Quantitative PCB Standards for Electron Capture Gas Chromatography. J. Chrom. Sci, 11 : 366-373, 1973.
 - 19) US EPA. Polychlorinated Biphenyls (PCBs) : Manufacturing, Processing, Distributin in Commerce, and Use Prohibitions : Use in Closed and Controlled Waste manufacturing Processes. Fed Regist., 47 : 46980-9620, 1982.
 - 20) Smith LM, Schwartz TR, Feltz K. Determination and Occurrence of Ahh-Active Polychlorinated Biphenyls, 2,3,7,8-Tetrachloro-p-dioxin and 2,3,7,8-Tetrachloro-dibenzofuran in Lake Michigan Sediment and Biota : The Question of their Relative Toxicological Significance. Chemosphere., 21(9) : 1063-1085, 1990.
 - 21) Tanabe S, Kannan N, Wakimoto T, et al. Method for the Determination of Three Toxic Non-Orthochlorine Substituted Coplanar PCBs in Environmental SaMPLES AT Partper-Thrillion Levels, Intern. J. Environ. Anal. Chem., 29 : 199-21324, 1987.
 - 22) Safe S, Phil D. Polychlorinated Biphenyls(PCBs), D i b e n z o - p - D i o x i n s (P C D D s 0 , Dibenzofurans(PCDFs), and Related Compounds : Environmental and Mechanistic Considerations Which Support the Development of Toxic Equivalency Factors(TEFs). Toxicology, 21 : 51-88, 1990.
 - 23) Bowadt S, Johansson B. Analysis of PCBs in Sulfur-Contraining Sediments by Off-Line Supercritical Fluid Extraction and HRGC-ECD. Anal. Chem., 66 : 667-673, 1994.
 - 24) Safe SH. Polychlorinated Biphenyls(PCBs) : Environmental Impact, Biochemical and Toxic Responses, and Implications for Risk Assessment. Critical Rev. Toxicol., 20(2) : 87-149, 1994.
 - 25) Huckins JH, Schwartz TR. Determination, Fate, and Potential Significance of PCBs in Fish and Sediment Samples with Emphasis on Selected Ahh-inducing Congeners. Chemosphere, 17(10) : 1995-2016, 1988.
 - 26) 박창규 : 유기염소계 살충제의 잔류분석법 : 공단 주변 하천 및 전답토 분석법. 한국농생물학회지, 23(1) : 5829, 1980.
 - 27) 박창규, 황을철 : 서호의 수질, 저니토 중 Polychlorinated Biphenyls 및 유기염소계 살충제의 잔류평가. 한국환경위생학회지, 1 : 105-115, 1982.
 - 28) 김정호, 문길호 : 금호강 저니토 중 Polychlorinated biphenyls(PCBs)의 잔류. 한국환경농화학회지, 14(3), 272-281, 1995.
 - 29) 김돈균 : 혈중 PCB함량에 관한 조사, 한국대기보전학회지, 9-15, 1985.