KOREAN J. FOOD SCI. TECHNOL. Vol. 42, No. 6, pp. 762~767 (2010)

KOREAN JOURNAL OF
한국식품과학회지
FOOD SCIENCE AND TECHNOLOGY

©The Korean Society of Food Science and Technology

식이를 통한 평가방법과 공급량 평가방법을 이용한 산화방지제 일일 추정 섭취량 안전성 평가

서희재 · 최성희[1]*
선문대학교 식품과학과, [1]한국보건산업진흥원

Safety Assessment of Estimated Daily Intakes of Antioxidants in Korean Using Dietary Survey Approach and Food Supply Survey Approach

Hee-Jae Suh and Sunghee Choi[1]*
Department of Food Science, Sun Moon University
[1]Korea Health Industry Development Institute

Abstract This study evaluated daily intakes of BHT, BHA, and TBHQ in Korean. The daily intakes were estimated using both a dietary survey approach and food supply survey approach. In the dietary survey approach, individual dietary intake data from the Korea National Health and Nutrition Survey in 2005, as well as analytical results of BHT in 131 samples, BHA in 134 samples, and TBHQ in 104 samples, were used to assess daily intakes of the antioxidants. In the food supply survey approach, both total production amounts of BHT, BHA and TBHQ and maximum permitted levels of the antioxidants were used to calculate daily intakes. In the dietary survey results, the average daily intakes of BHT, BHA and TBHQ were 0.8, 0.5, and 0.3 μg/kg body weight/day, respectively, and below 0.2% of the ADI (acceptable daily intake) set by JECFA (Joint FAO/WHO Expert committee on Food Additives). In the food supply survey approach, the average daily intakes of BHT, BHA,and TBHQ were all 0.3 mg/kg body weight/day. The ratios of ADI were 97, 60, and 40%, respectively. According to these results, daily intakes of BHT, BHA, and TBHQ in Korean are lower than the ADI.

Key words: butylated hydroxytoluene (BHT), butylated hydroxyanisole (BHA), tert-butyl hydroquinone (TBHQ), daily intake, food supply survey

서 론

식품첨가물의 섭취량을 평가하는 방법은 매우 다양하고, 계산 방법에 따라 차이가 상당하기 때문에(1) 연구자들은 문제가 되는 식품첨가물의 종류, 소요시간, 예산, 평가 목적 등을 고려하여 융통성 있게 식품첨가물의 섭취량 평가방법을 적용해야 한다. 우선, 식품첨가물 섭취량 평가의 첫 단계로는 Codex 국제식품규격위원회(Codex Alimentarius Commission)에서 권고하고 있는 Budget method가 이용된다. 이 방법은 식품첨가물 최대허용량(maximum permitted level)에 계수를 적용하여 식품에 존재하는 식품첨가물의 수준을 산출하는 방법으로 매우 간편하게 식품첨가물 섭취량을 추정할 수 있으나, 정확도가 떨어지므로 위해성 평가 자료로는 이용되지 않고 초기 검색을 위해서만 이용되고 있다(2). 식품첨가물 섭취량 단순 평가 방법으로는 공급량에 의한 평가 방법(food supply survey approach)이 있다. 이 방법에선 우선, 1년 동안의 가공식품 생산량, 수출량, 수입량 등에 관한 통계자료를 이용하여 가공식품의 총 공급량을 산출한다. 이렇게 얻어진 가공식품의 총 공급량을 총 인구수로 나누어 국민 평균 일인당 가공식품 소비량으로 환산하고, 그 값을 식품첨가물 섭취량 평가를 위한 식이섭취량 자료로 이용한다. 이렇게 구해진 식이섭취량 자료와 대상 식품의 첨가물 최대허용량을 곱하여 식품첨가물 섭취량을 추정한다. 그러나 이 방법은 가공식품에 반드시 대상 식품첨가물이 최대사용기준 만큼 함유되어 있다는 것을 가정하고 있고, 또한 가공 및 저장 중 손실되는 양은 고려하지 않고 있기 때문에, 식품첨가물 섭취량을 평가할 경우 과대평가되는 경향이 있다. 따라서 이 방법은 식품첨가물 섭취량 평가를 위한 첫 번째 단계에서 주로 이용된다(3). 보다 정확한 식품첨가물 섭취량을 추정하고자 할 경우에는 다음의 두 가지 데이터 소스를 이용한 평가 방법이 이용된다. 식품섭취 데이터로는 대표식단을 이용하거나(market basket approach), 회상법, 기록법에 의한 식이섭취 데이터가 주로 이용되고(4), 식품 중의 첨가물 농도에 대한 데이터로는 식품첨가물 최대허용량을 이용하거나, 사용대상 식품을 구입하여 첨가물 농도를 분석한 실험결과를 이용한다. 최대 허용량을 이용하는 경우는 시간 및 비용 절감의 이유로 많은 나라에서 이용되고 있으며(5), 우리나라에서는 주로 식품첨가물 분석결과를 이용하는 연구가 많았다(6-11). 현재까지 우리나라에서 섭취량이 평가된 대표적인 식품첨가물로는 보존료류(6-8), 인공감미료류(10), 페놀계 항산화제(9), 이산화황(11) 등이 있다.

산화방지제는 유지의 산화를 억제하기 위해 식품가공 시에 첨가되는 식품첨가물로서 우리나라에서는 BHT(butylated hydroxy-

*Corresponding author: Sunghee Choi, Department of Food Safety Industry, Korea Health Industry Development Institute, Seoul 156-050, Korea
Tel: 82-2-2194-7339
Fax: 82-2-824-1766
E-mail: choish@khidi.or.kr
Received August 23, 2010; revised September 28, 2010; accepted September 29, 2010

toluene), BHA(butylated hydroxyanisole), TBHQ(tert-butyl hydroquinone) 등의 페놀계 산화방지제와 EDTA(ethylenediamine tetra acetate), Erythorbic acid(에리소르빈산) 등이 주로 이용된다(12). BHT, BHA, TBHQ는 1940년대 후반부터 사용되기 시작한 산화방지제로 비교적 독성이 약하고 첨가된 제품에 냄새나 맛을 주지 않으므로(13), 국내에서는 빵 및 떡류, 과자류, 껌류 등 일부 품목에 이용되어 왔다(14). 그러나 과량 섭취할 경우 BHA는 쥐에게 위장 증식 및 위장 각화증을 일으킬 수 있고, BHT는 혈액응고 인자를 감소시키므로 일부 동물에게서 사망을 초래할 수 있는 내·외출혈을 유발하거나, 쥐와 같은 일부 동물에게 암을 유발할 수 있으며, TBHQ는 일부 동물실험에서 체중감소 및 유전적 독성을 보였다는 보고가 있다(13).

따라서 본 연구에서는 식품 중 사용빈도가 높은 BHT, BHA, TBHQ의 식이 안전성을 평가하고자, 식이를 통한 BHT, BHA, TBHQ의 일일 추정 섭취량과 공급량 자료를 이용한 BHT, BHA, TBHQ의 일일 추정 섭취량을 파악하였다. 식이를 통한 섭취량은 가공식품에 함유되어 있는 BHT, BHA, TBHQ의 농도를 분석하고, 국민건강·영양조사의 식이섭취량 자료(dietary survey approach)를 적용하여 추정하였고, 공급량 자료를 이용한 섭취량은 가공식품 총 공급량(food supply survey approach)과 식품첨가물 최대허용량을 이용하여 추정하였다. 또한 BHT, BHA, TBHQ의 식이 안전성을 평가하기 위해 JECFA(Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives)에서 설정한 일일허용섭취량(acceptable daily intake, ADI)과 비교·검토하여 그 섭취 안전성을 평가하였다.

재료 및 방법

시료수 결정 및 샘플링

시료수 결정 및 샘플링은 식품의약품안전청에 의해 제시된 '한국인의 식품첨가물 일일 섭취량 평가 지침서(안)'(15)에 따라 실시하였다. 식품첨가물 공전의 산화방지제 사용기준에 따라 대상식품을 선정하였고(14), 2007년 3월 한 달간 서울, 경기 지역의 백화점과 대형마트에서 사전 시장조사를 하였다. 이를 토대로 출하량이 많은 제품에 가중치를 적용하여 시료수를 결정하였다. 시료는 전국의 백화점, 대형마트에서 구입하였으며, 수입식품은 남대문 수입상가, 부산 수입식품 전문 판매점에서 구입하였다. 본 연구에 사용된 시료는 산화방지제 별로 BHT 131품목(빵 및 떡류, 과자류, 츄잉껌, 식용유지, 식사대용 곡류가공품, 견과류가공품), BHA 134품목(빵 및 떡류, 과자류, 츄잉껌, 견과류가공품, 마가린), TBHQ 104 품목(빵 및 떡류, 과자류, 츄잉껌, 어패류가공품)이었다.

시약

BHA, BHT, TBHQ 표준물질은 Sigma Aldrich Co.(St. Louis. Mo, USA) 제품을 사용하였다. 시료 전처리에 사용한 초산과 무수황산 나트륨은 Junsei Chemicals(Tokyo, Japan) 제품을 사용하였고, 아세토니트릴, 2-프로판올, 헥산은 J&T Baker(Phillipsburg, NJ, USA) 제품을 사용하였으며, 증류수와 에탄올은 SK Chemicals(Ulsan. Korea) 제품을 사용하였다. HPLC 분석을 위한 이동상에는 HPLC용 초산과 아세토니트릴 제품을 각각 Junsei Chemicals(Tokyo, Japan)와 J&T Baker(Phillipsburg, NJ, USA)에서 구입하여 사용하였다.

산화방지제 함량 분석

식품 중 산화방지제의 함량은 식품공전(16) 방법에 따라 분석하였다. 버터, 마가린, 츄잉껌, 어패류가공품, 식사대용 곡류가공품의 경우 잘게 세절한 검체 5 g을 취해 수분을 제거하고 아세토니트릴:2-프로판올:에탄올(2:1:1) 혼액 500 mL을 가하여 균질화하였다. 이를 −20- −5°C에서 1시간 냉각시킨 후 여과하였다. 잔류물은 아세토니트릴:2-프로판올:에탄올(2:1:1) 혼액 5 mL씩으로 3회 씻어 여액을 모두 모은 후 농축하였다. 농축액은 0.45 μm membrane 필터를 이용하여 여과시켜 시험용액으로 하였고, Table 1의 조건으로 HPLC를 이용하여 분석하였다. 액상유의 경우 검체 5 g을 정밀히 취하여 15 mL 헥산에 용해시킨 후 헥산포화아세토니트릴 50 mL씩으로 3회 추출하고 농축한 것을 시험용액으로 하였다. HPLC 분석조건은 Table 1과 같다. 이때 검출한계는 BHT, BHA, TBHQ 각각 0.59, 0.60, 0.64 ppm이었고, 회수율은 BHT, BHA, TBHQ 각각 97, 93, 100%였다. 불검출의 경우는 산화방지제 함량을 0으로 간주하여 계산하였다.

식이를 통한 산화방지제 일일 섭취량 추정 및 안전성 평가

식이를 통한 산화방지제의 일일 추정 섭취량은 식품의약품안전청에 의해 제시된 '한국인의 식품첨가물 일일 섭취량 평가지침서(안)'(15)에 따라 산출하였다. 산화방지제의 일인당 일일 추정 섭취량(estimated daily intake, EDI)은 식품 중 산화방지제 평균함량(C_{ave})에 '2005 국민건강·영양조사'(17)의 식이섭취량 결과(F_{ave})를 곱하여 산출하였다. 또한 FASEB(federation societies for experimental biology)에서 소비자의 상위 90%에 해당하는 식품섭취량을 가진 섭취자의 식품첨가물 섭취량을 가장 의미 있는 수치로 권장하고 있기 때문에(18), 본 연구에서도 상위 섭취자(90th percentile)는 조사자 전체의 상위 90th percentile 에 해당하는 섭취자의 산화방지제 섭취량으로 산출하였다. 산화방지제 섭취량의 안전성 평가는 JECFA에서 정한 ADI와 비교하여 평가하였다. ADI

Table 2. Concentration of BHT in foods and estimated daily intake

Food category	No. of sample	No. of detected sample (%)	Mean conc[1]. (mg/kg)	Food intake (g/day)		Estimated daily intake of BHT (μg/kg bw/day)	
				Average intake	90th percentile	Average intake	90th percentile
Breads or rice cakes	11	18.2	1.6	14.37	47.02	0.46	1.55
Dried confectioneries	31	9.7	1.4	7.44	21.00	0.26	0.69
Chewing gums	60	93.3	45.5	0.02	0.00	0.03	0.00
Oils	11	0.0	0.0	7.82	18.37	0.00	0.00
Breakfast cereals	7	14.3	0.4	0.46	0.00	0.00	0.00
Processed nut products	11	9.1	0.2	0.25	0.00	0.00	0.00
Total	131	46.6				0.75	2.24
% ADI						0.20	0.70

[1]Mean calculated from all sample values. n.d. was considered as '0'.

와 비교하기 위해 산화방지제의 섭취량은 평균체중으로 나누어 체중 kg당 산화방지제 일일 추정 섭취량을 산출하였으며, 이때 평균체중은 '2005 국민건강·영양조사' 검진조사부문의 국민평균 체중, 연령별 평균체중을 이용하였다(19). JECFA에서 설정한 ADI는 BHT 300 μg/kg body weight/day, BHA 500 μg/kg body weight/day, TBHQ 700 μg/kg body weight/day이다.

$EDI_{ave}=(C_{ave}xF_{ave})\div body\ weight$

$EDI_{90th}=(C_{ave}xF_{90th})\div body\ weight$

공급량 자료를 이용한 산화방지제 섭취량 추정 및 안전성 평가

산화방지제 사용 대상 식품의 식이 섭취량 산출

식품 및 식품첨가물 생산실적(20), 수입식품 등 검사연보(21) 자료를 이용하여 대상 식품의 총 생산량을 산출하였고, 이를 산화방지제 섭취량 추정을 위한 식품섭취량 자료로 이용하였다. 산화방지제의 사용이 허용된 식품의 일인당 일일 평균 섭취량은 각 식품의 2005년 출하량(P)과 수입량(I)을 합하여 산출되는 국내 소비량을 국민 총 섭취량으로 가정하고, 국민 총 인구수 및 연간일수(365일)로 나누어 각 대상 식품의 일인 일일 평균 섭취량을 산출하였다. 국민 총 인구수는 45,983,421명을 이용하였다(22).

산화방지제 섭취량 추정

산화방지제의 섭취량은 산화방지제 사용 대상 식품의 일인당 일일 평균 섭취량에 산화방지제의 최대허용량(maximum permitted level, MPL)을 곱하여 산출하였다. 이를 한국인 평균 체중인 55 kg으로 나누어 체중 kg당 산화방지제 섭취량으로 추정한 후 JECFA의 ADI와 비교·검토하였다.

$EDI=[MPLx\{(P+I)/total\ population\}\div 365]\div body\ weight$

결과 및 고찰

식품별 산화방지제 함량 분석

빵 및 떡류 등 6 품목의 식품에서 BHT를 분석한 결과는 Table 2와 같다. 식용 유지를 제외한 대부분의 대상 식품에서 BHT가 검출되었으며, 총 131개 시료 중 62개 시료에서 BHT가 검출되어 46.6%의 검출율을 나타내었고, 껌류의 검출율이 93.3%로 가장 높았다. 평균 검출량도 껌류가 45.5 ppm으로 가장 높았다.

빵 및 떡류 등 5 품목의 식품에서 BHA를 분석하여 Table 3과 같은 결과를 얻었다. 총 134개의 분석 시료 중 34개 시료에서 BHA가 검출되어 25.4%의 검출율을 나타내었으며, 껌류가 가장 높은 검출율인 40.0%를 보였다. 평균 함량은 껌류 1.7 ppm, 빵 및 떡류 1.1 ppm, 과자류 0.9 ppm으로 나타났다.

빵 및 떡류 등 4 품목의 식품에서 TBHQ를 분석한 결과는 Table 4와 같다. 4개의 분석 대상 품목 모두에서 TBHQ가 검출되었으며, 총 101개 분석 시료 중 32개 시료에서 TBHQ가 검출되어 31.4%의 검출율을 보였다. 품목별로는 수산물가공품에서 가장 높은 검출율(100%)을 나타내었으며, 이어서 껌류 33.3%, 과자류 29.0%의 순이었다. TBHQ 평균 함량은 수산물 가공품 1.8 ppm, 과자류 1.2 ppm 순으로 높게 나타났다.

식이를 통한 산화방지제 일일 섭취량 추정 및 안전성 평가

BHT의 평균 섭취자, 상위섭취자에 대한 일일 추정 섭취량은 Table 2와 같다. 한국인의 평균 BHT 섭취 수준은 빵 및 떡류 등 6개 품목의 식품을 통해 0.75 μg/kg body weight/day 섭취하는 것으로 나타났으며, 이는 ADI 대비 0.2%로서 매우 안전한 수준인 것을 알 수 있었다. BHT 섭취에 기여하는 식품은 빵 및 떡류 0.46 μg/kg body weight/day와 과자류 0.26 μg/kg body weight/day로 나타났다. 상위섭취자(90th percentile 섭취자)의 BHT 섭취량은 2.24 μg/kg body weight/day, ADI 대비 0.7%로 나타나, 한국인의 BHT 섭취수준은 평균 섭취자와 상위섭취자 모두에게 매우 안전한 수준이라는 것을 알 수 있었다. 한편, 껌류, 시리얼, 견과류가공품의 경우 상위 90% 섭취량을 가진 섭취자가 없기 때문에 상위섭취량이 0.00 μg/kg body weight/day로 산출되었다.

식이섭취량과 식품첨가물 분석 데이터를 적용하여 추정한 식품첨가물 섭취량 평가는 가장 정밀한 방법 중의 하나이기 때문에, 그 신뢰성이 보장된다. 따라서 한국인의 BHT 섭취 수준은 매우 안전하다고 결론지을 수 있다. 한편, 일본도 또 다른 정밀평가방법의 하나인 market basket study법을 이용하여 BHT 섭취량을 평가하였는데, 추정된 섭취량은 0.85 μg/kg body weight/day 이었고, 이는 ADI 대비 0.03%에 해당하는 양으로, 우리나라와 비슷하게 안전한 수준 이었다(23).

BHA의 평균 섭취자, 상위섭취자에 대한 일일 추정 섭취량은 Table 3과 같다. 한국인의 평균 BHA 섭취 수준은 빵 및 떡류 등 5개 품목의 식품을 통해 0.51 μg/kg body weight/day 섭취하는 것으로 나타나 BHT 보다 적은 양이었다. BHA 섭취에 기여하는 식품은 빵 및 떡류(0.34 μg/kg body weight/day), 과자류(0.17 μg/kg body weight/day)로 BHT와 동일하게 나타났다. 껌류, 견과류가공품, 마가린은 상위 90% 섭취량을 가진 섭취자가 없기 때문에 상위섭취량이 0.00 μg/kg body weight/day로 산출되었다. BHA의 섭취 안전성을 평가하기 위해 ADI와 비교해 본 결과, ADI 대비 0.1%로 나타나, 한국인의 BHA 섭취 수준이 매우 안전하다는 것을 알 수 있었다. 상위섭취자(90th percentile 섭취자)의 BHA 섭취량은 1.59 μg/kg body weight/day, ADI 대비 0.3%로 나타나, 평균 섭취자와 마찬가지로 매우 안전한 수준임을 알 수 있었다.

Table 3. Concentration of BHA in foods and estimated daily intake

Food category	No. of sample	No. of detected sample (%)	Mean conc[1]. (mg/kg)	Food intake (g/day)		Estimated daily intake of BHA (μg/kg bw/day)	
				Average intake	90th percentile	Average intake	90th percentile
Breads or rice cakes	11	9.1	1.1	14.37	47.02	0.34	1.13
Dried confectioneries	31	19.4	0.9	7.44	21.00	0.17	0.46
Chewing gums	60	40.0	1.7	0.02	0.00	0.00	0.00
Processed nuts product	11	18.2	0.4	0.46	0.00	0.00	0.00
Margarine	21	4.8	0.0	0.02	0.00	0.00	0.00
Total	134	25.4				0.51	1.59
% ADI						0.10	0.30

[1]Mean calculated from all sample values. n.d. was considered as '0'.

Table 4. Concentration of TBHQ in foods and estimated daily intake

Food category	No. of sample	No. of detected sample (%)	Mean conc[1]. (mg/kg)	Food intake (g/day)		Estimated daily intake of TBHQ (μg/kg bw/day)	
				Average intake	90th percentile	Average intake	90th percentile
Breads or rice cakes	11	9.1	0.0	14.37	47.02	0.00	0.02
Dried confectioneries	31	29.0	1.2	7.44	21.00	0.22	0.60
Chewing gums	60	33.3	0.4	0.02	0.00	0.03	0.00
Processed fishery products	2	100.0	1.8	0.13	0.00	0.00	0.00
Total	101	31.4				0.25	0.62
% ADI						0.04	0.1

[1]Mean calculated from all sample values. n.d. was considered as '0'.

Table 5. Estimated daily intake of BHT by national food supply data and maximum permitted level

Applicable food	Production amount (kg)	Import amount (kg)	Intake amount (g/person/day)	Maximum permitted level (g/kg)	Estimated daily intake of BHT (mg/kg bw/day)
Oils	751,995,000	454,239,199	71.71	0.2	0.26
Butters	3,891,000	17,998,440	1.30	0.2	0.00
Salted fishery product	430,000	21,501	0.03	0.2	0.00
Chewing gums	11,936,000	1,558,330	0.47	0.75	0.01
Ginseng gum	2,394,000	22,798	0.12	0.75	0.00
Weight control dietary product	9,674,000	439,892	0.56	0.05	0.00
Breakfast cereals	9,368,000	300	0.56	0.05	0.00
Mayonnaise	65,211,000	12,683	2.64	0.06	0.00
Poultry	38,860,000	60,384	2.32	0.1	0.00
Dried fishery product	26,036,000	21,129,194	2.78	0.2	0.01
Total			82.49		0.29
% ADI					96.70

일본은 market basket 방법으로 BHA 섭취량을 평가하여 국민 평균 섭취량이 3 μg/kg body weight/day, ADI 대비 0.6%로 보고하였다(23). 일본의 BHA 섭취 수준도 우리나라와 마찬가지로 매우 안전한 수준이었다.

TBHQ의 평균 섭취자, 상위섭취자에 대한 일일 추정 섭취량은 Table 4와 같다. 한국인의 평균 TBHQ 섭취 수준은 빵 및 떡류 등 4개 품목의 식품을 통해 0.25 μg/kg body weight/day 섭취하는 것으로 나타났으며, 이는 ADI 대비 0.04%로서 위의 두 산화방지제 보다 더 안전한 수준인 것을 알 수 있었다. TBHQ 섭취에 기여하는 식품은 과자류로서 0.22 μg/kg body weight/day로 나타났다. 상위섭취자(90th percentile 섭취자)의 TBHQ 섭취량은 0.62 μg/kg body weight/day였고, 이는 ADI 대비 0.1%로서 역시 매우 안전한 수준이었다. 껌류와 수산물 가공품의 경우 상위 90% 섭취량을 가진 섭취자가 없기 때문에 상위섭취량이 0.00 μg/kg body weight/day로 산출되었다.

중국은 식이기록법의 방법으로 TBHQ 섭취량을 평가하여 0.69 mg/kg body weight/day(ADI 100%)로 보고하였고(23), 미국은 모델식이 평가방법으로 0.37 mg/kg body weight/day(ADI 50%)로 보고함으로(23) TBHQ 섭취 수준이 우리나라 보다 현저히 높은 것을 알 수 있었다. 중국과 미국은 예산 및 경제적인 이유로 인해 식이섭취데이터와 최대허용량을 근거로 TBHQ 섭취량을 추정하였고(23) 본 연구에서는 보다 정밀한 방법인 식이섭취데이터와 식품 중 첨가물 분석 데이터를 이용하였기 때문에 본 연구 결과로 도출된 우리나라의 TBHQ 섭취량이 중국과 미국 보다 더 낮게 나타난 것으로 보인다.

공급량 자료를 이용한 산화방지제 섭취량 추정 및 안전성 평가

식품 총생산량을 근거로 산출한 식품 공급량과 그 식품에 허용된 BHT 최대 허용량을 적용하여 산출한 BHT 섭취량은 Table 5와 같이 나타났다. 공급량에 의한 BHT 평균 섭취량은 0.29 mg/kg body weight/day로 나타나, ADI 대비 96.7%로 나타났다. 이는 위에서 서술한 바와 같이 식이섭취량 자료와 식품 첨가물 분석 데이터를 이용한 정밀평가 결과에 비해 약 480배에 달하는 값으로, 식이를 통한 섭취량 추정 결과와 공급량 자료를 이용한 섭취량 추정 결과 간에는 상당한 결과 차이가 있음을 시사해 주는 결과이다.

다른 나라의 경우도 몇몇 국가에서 다양한 방법으로 BHT 섭취량을 평가하였는데, 미국의 경우 모델식이 섭취량과 최대허용량을 적용하여 0.39 mg/kg body weight/day(ADI 대비 130%) 섭취한다고 보고하였고, 브라질은 market basket에 의한 섭취량 결과와 최대허용량을 적용하여 0.1 mg/kg body weight/day(ADI 대비 33.3%) 섭취한다고 보고하였다(23). 이러한 BHT 섭취량 평가 결과들을 볼 때, 미국의 BHT 섭취 수준은 위험하다고 할 수 있으며, 우리나라도 안심할 수 없는 수준이었다. 그러나 이 결과는 식품첨가물 최대 허용량을 적용해 산출한 결과이기 때문에 실제 분석결과를 적용한 결과와는 매우 다른 수준이다. 따라서 공급량 데이터와 최대허용량을 적용한 단순평가 방법은 식품첨가물 섭취 안전성 평가 자료로는 이용하기 곤란하다는 것을 확인할 수 있었다. 이 결과는 단지 안전성 평가를 위한 초기 검색 자료 및 같은 방법을 이용한 다른 나라의 식품첨가물 섭취량 자료와 비교해 보는 용도로만 이용할 수 있을 것이다.

식품 공급량과 첨가물 최대 허용량을 근거로 산출한 BHA 섭

Table 6. Estimated daily intake of BHA by national food supply data and maximum permitted level

Applicable food	Production amount (kg)	Import amount (kg)	Intake amount (g/person/day)	Maximum permitted level (g/kg)	Estimated daily intake of BHA (mg/kg bw/day)
Oils	751,995,000	454,239,199	71.71	0.2	0.26
Butters	3,891,000	17,998,440	1.30	0.2	0.00
Salted fishery product	430,000	21,501	0.03	0.2	0.00
Chewing gums	11,936,000	1,558,330	0.47	0.75	0.01
Ginseng gum	2,394,000	22,798	0.12	0.75	0.00
Weight control dietary product	9,674,000	439,892	0.56	0.05	0.00
Breakfast cereals	9,368,000	300	0.56	0.05	0.00
Mayonnaise	65,211,000	12,683	2.64	0.14	0.01
Poultry	38,860,000	60,384	2.32	0.1	0.00
Dried fishery product	26,036,000	21,129,194	2.78	0.2	0.01
Total			82.49		0.30
% ADI					60.00

Table 7. Estimated daily intake of TBHQ by national food supply data and maximum permitted level

Applicable food	Production amount (kg)	Import amount (kg)	Intake amount (g/person/day)	Maximum permitted level (g/kg)	Estimated daily intake of TBHQ (mg/kg bw/day)
Oils	751,995,000	454,239,199	71.71	0.2	0.26
Butters	3,891,000	17,998,440	1.30	0.2	0.00
Salted fishery product	430,000	21,501	0.03	0.2	0.00
Chewing gums	11,936,000	1,558,330	0.47	0.75	0.01
Ginseng gum	2,394,000	22,798	0.12	0.75	0.00
Dried fishery product	26,036,000	21,129,194	2.78	0.2	0.01
Total			76.42		0.28
% ADI					40.00

취량은 Table 6과 같이 나타났다. BHA 평균 섭취량은 0.30 mg/kg body weight/day로 나타나, ADI 대비 60.0%로 나타났다. 이는 앞에서 서술한 정밀 평가 방법(식이섭취량 자료와 식품 첨가물 분석 데이터 적용)에 비해 200배 많은 양이다. 그러나 ADI와 비교해 보았을 때 현저히 낮은 수준이었다. 따라서 우리나라의 BHA 섭취수준은 정밀평가 방법인 식이를 통한 섭취량 추정 결과와 단순 평가 방법인 공급량 자료를 이용한 섭취량 추정 결과 모두 매우 안전한 수준인 것을 알 수 있었다.

미국은 모델식이와 최대 허용량을 적용하여 BHA 섭취량을 평가한 결과 0.4 mg/kg body weight/day(ADI 대비 80%)로 보고하였고(23), 브라질은 가계예산결과와 최대허용량을 적용하여 BHA 섭취량을 0.09 mg/kg body weight/day(ADI 대비 18%)로 보고하였다(24). 호주와 뉴질랜드(통합조사결과)는 개인 식이기록 자료와 최대허용량 자료를 적용하여 BHA 섭취량을 0.39 mg/kg body weight/day(ADI 대비 78%)로 보고하였고, 프랑스는 가계경제 조사결과 BHA 섭취량이 0.02 mg/kg body weight/day(ADI대비 4%)라고 보고하였다(23). 이러한 여러 나라의 BHA 섭취량 평가 결과를 비교해 보면, 가계경제조사(가계예산조사)를 이용한 프랑스와 브라질은 비교적 낮은 수준 섭취하는 것으로 나타났고, 최대허용량을 적용한 미국, 호주·뉴질랜드, 우리나라는 다른 나라에 비해 섭취 수준이 높은 것을 알 수 있었다. 그러나 이러한 평가 결과는 식품 중 식품첨가물 분석 데이터를 이용한 결과에 비해 과대평가될 수 있는 결과임에도 불구하고 위의 모든 나라에서 BHA 섭취량이 ADI 보다 낮았기 때문에 각 나라의 실제 BHA 섭취량은 매우 안전한 수준일 것이라고 추측할 수 있었다.

공급량 방법에 의한 TBHQ 섭취량 추정 결과는 Table 7과 같다. TBHQ 평균 섭취량은 0.28 mg/kg body weight/day로 나타나, ADI 대비 40.0%로 나타났다. 이는 식이섭취량 자료와 식품 첨가물 분석 데이터를 이용한 정밀평가 결과에 비해 약 400배에 달하는 값이지만, ADI 보다는 현저히 낮은 양으로, 안전한 수준이라는 것을 알 수 있었다.

중국과 미국은 단순 평가방법의 하나인 식품첨가물의 국내 생산량을 근거로 TBHQ 섭취량을 추정한 결과(poundage approach) 각각 0.04 mg/kg body weight/day(ADI 대비 0.6%), 0.14 mg/kg body weight/day(ADI 대비 20%) 섭취한다고 보고하였다(23). TBHQ의 섭취량을 평가한 나라는 많지 않지만, 모두 ADI 보다 낮은 결과였다. 따라서 현재까지 TBHQ의 섭취수준은 세계적으로 안전하다고 결론지을 수 있을 것이다. 또한 위에서 언급한 여러 나라의 산화방지제 섭취량 평가 결과들을 볼 때 평가 방법 간에 상당한 차이가 있음을 알 수 있었다. 따라서 식품첨가물 섭취량을 추정할 경우, 연구자는 다양한 식품첨가물 섭취량 추정 방법 중 연구 목적과 비용, 시간 등을 고려하여 최적의 방법을 적용하고, 또한 각 방법이 가질 수 있는 제한점을 충분히 감안할 필요가 있다는 것을 확인할 수 있었다.

이상에서 우리나라의 BHT, BHA, TBHQ 평균 섭취량을 정밀평가 방법인 식이를 통한 방법과 단순 평가 방법인 공급량 자료를 이용한 방법으로 추정해 본 결과, 모두 ADI 이하로 나타났다. 특히 식이섭취량과 식품첨가물 분석 결과를 적용한 정밀평가의 경우 세 종류 산화방지제의 평균섭취량이 모두 ADI의 1%에도 못 미치는 것으로 나타났고, 상위섭취자(90^{th} percentile)의 섭취량

도 역시 ADI의 1% 미만으로 나타나, 한국인의 BHT, BHA, TBHQ 섭취수준은 매우 안전하다는 것을 알 수 있었다. 그러나 식이를 통한 평가결과와 공급량 자료를 적용한 평가 결과 간에 200-480배의 섭취량 차이를 보여, 공급량 자료를 적용한 단순 평가 방법은 단지 섭취 안전성 평가를 위한 검색 자료로만 이용하여야 한다는 것을 다시 한 번 확인할 수 있었다. 또한 빵 및 떡류와 과자류의 경우 BHT와 BHA 섭취량에 가장 크게 기여하는 식품인 것으로 나타났고, TBHQ도 과자류가 최대 기여식품으로 나타나, 어린이들의 간식 섭취에 주의할 필요가 있을 것으로 사료된다. 따라서 향후 화학물질의 노출에 민감할 수 있는 어린이들을 대상으로 한 별도의 모델평가가 이루어진다면 취약집단의 안전성 평가를 위한 귀한 자료로 이용될 수 있을 것이다. 또한 본 연구는 식품첨가물의 안전한 사용기준 개정 시에 과학적 데이터로 이용될 수 있을 것이다.

요 약

식품 중 사용빈도가 높은 BHT, BHA, TBHQ에 대한 식이 안전성을 평가하고자, 식이를 통한 섭취량 추정 방법과 공급량 자료를 통한 섭취량 추정 방법을 적용하여 한국인의 BHT, BHA, TBHQ 일일추정 섭취량을 평가하였다. 식이를 통한 섭취량 추정을 위해 산화방지제 별로 BHT 131품목(빵 및 떡류, 과자류, 츄잉껌, 식용유지, 식사대용 곡류가공품, 견과류가공품), BHA 134품목(빵 및 떡류, 과자류, 츄잉껌, 견과류가공품, 마가린), TBHQ 104 품목(빵 및 떡류, 과자류, 츄잉껌, 어패류가공품)을 HPLC-UVD 시스템을 이용하여 분석한 후 국민건강・영양조사의 식이섭취량자료를 이용하여 BHT, BHA, TBHQ의 일일추정 섭취량을 산출하였다. 공급량 자료를 이용한 섭취량 추정을 위해 식품 공급량과 첨가물 최대 허용량을 근거로 BHT, BHA, TBHQ의 일일추정 섭취량을 산출하였다. 이 결과를 JECFA의 ADI와 비교하여 안전성을 평가하였다. 식이를 통한 섭취량 추정 결과 BHT의 평균 일일추정 섭취량은 0.8 μg/kg body weight/day, BHA의 평균 일일추정 섭취량은 0.5 μg/kg body weight/day, TBHQ의 평균 일일추정 섭취량은 0.3 μg/kg body weight/day로 나타났고, 이는 각각 ADI 대비 0.2, 0.1, 0.04% 이었다. 상위섭취자(90^{th} percentile)의 BHT 평균 섭취량은 2.2 μg/kg body weight/day, BHA의 평균 일일추정 섭취량은 1.6 μg/kg body weight/day, TBHQ의 평균 일일추정 섭취량은 0.6 μg/kg body weight/day로 나타났고, 이는 각각 ADI 대비 0.7, 0.3, 0.1% 로 나타나, 한국인의 BHT, BHA, TBHQ 섭취량은 평균섭취자와 상위섭취자 모두에게서 안전한 수준임을 알 수 있었다. 또한 공급량 자료를 이용한 섭취량 추정 결과 BHT, BHA, TBHQ 섭취량은 각각 0.3 mg/kg body weight/day(ADI 대비 97%), 0.3 mg/kg body weight/day(ADI 대비 60%), 0.3 mg/kg body weight/day(ADI 대비 40%)로 나타나, 역시 안전한 수준인 것을 알 수 있었다. 그러나 식이를 통한 섭취량 추정 결과와 공급량 자료를 이용한 섭취량 추정 결과 간에 200-480배의 섭취량 차이를 보여, 식품첨가물 섭취량은 그 추정 방법에 따라 많은 차이가 있다는 것을 알 수 있었다.

문 헌

1. Gibney MJ, Lambe J. Estimation of food additive intake - methodology. Food Addit. Contam. 14: 405-410 (1996)
2. CAC. Guidelines for simple evaluation of food additive intake. Codex Alimentarius Commission, Geneva, Switzerland (1989)
3. Kroes R, Müller D, Lambe J, Löwik MRH, Van Klaveren J, Kleiner J, Massey R, Mayer S, Urieta I, Verger P, Visconti A. Assessment of intake from the diet. Food Chem. Toxicol. 40: 327-385 (2002)
4. Yoshio I. Daily intakes of food additives in Japan determination of food additives in food (1976-1994). Food Hyg. Res. 45: 17-68 (1995)
5. Codex Committee on Food Additives and Contaminants. Consideration of Codex General Standard for Food Additives: Proposed Draft Revised Annex A at Step 3. CX/FAC 98/9. Codex Alimentarius Commission, Geneva, Switzerland. pp. 1-9 (1997)
6. Yoon HJ, Cho YH, Park JY, Lee CH, Park SK, Cho YJ, Han KW, Lee JO, Lee CW. Assessment of estimated daily intakes of sorbates benzoates, and esters of p-hydroxybenzoic acid for average consumers in Korea. J. Food Hyg. Saf. 16: 53-60 (2001)
7. Yoon HJ, Cho YH, Park JY, Lee CH, Park SK, Cho YJ, Han KW, Lee JO, Lee CW. Assessment of estimated daily intakes of benzoates for average and high consumers in Korea. Food Addit. Contam. 20: 127-135 (2003)
8. Choi SH, Lee JY, Park EY, Won J, Hong KH, Moon GI, Kim MS, Hong JH. Assessment of estimated daily intakes of preservatives in the Korean population. J. Food Sci. Technol. 40: 503-509 (2008)
9. Suh HJ, Chung MS, Cho YH, Kim JW, Kim DH, Han KW, Kim CJ. Estimated daily intakes for BHA, BHT, and TBHQ in Korea. Food Addit. Contam. 22: 1176-1188 (2005)
10. Chung MS, Suh HJ, Yoo WC, Choi SH, Cho YJ, Cho YH, Kim CJ. Daily intake assessment for saccharin, stevioside, D-sorbitol, and aspartame of various processed foods in Korea. Food Addit. Contam. 22: 1087-1097 (2005)
11. Suh HJ, Cho YH, Chung MS, Kim BH, Preliminary data on sulphite intake from the Korean diet. J. Food Compos. Anal. 20: 212-219 (2007)
12. KFDA. Dietary Intake of Food Additive by Korean Population-preservatives, Antioxidant. Korea Food & Drug Administration. Seoul. Korea. p. 238 (2007)
13. Sherwin ER. Antioxidants. pp. 139-194. In: Food Additives. Branen AL, Davidson PM, Saliminen S (eds). Marcel Dekker Inc., New York, NY, USA (1990)
14. KFDA. Korean Food Additives Code, Korea Food & Drug Administration. Seoul. Korea (2007) Available from: http://fa.kfda.go.kr/ Accessed June 3, 2010.
15. KFDA. Daily Dietary Intake of Food Additive by Korean Population. Korea Food & Drug Administration, Seoul, Korea. pp. 221-290 (2004)
16. KFDA. Korean Food Code, Korea Food & Drug Administration. Seoul. Korea (2003) Available from: http://fa.kfda.go.kr/ Accessed June 7, 2010.
17. MOHW. The 3rd Korea National Health & Nutrition Examination Survey (KNHANES)-Nutrition survey. Ministry of Health and Welfare, Seoul, Korea. pp. 115-203 (2007)
18. Nutriscan. An Evaluation of the methodologies for the Estimation of Intakes of Food Additives and Contaminant in European Community. The O'Reilly Institute. Trinity College. Dublin. Ireland. p. 20 (1992)
19. MOHW. The 3rd Korea National Health & Nutrition Examination Survey (KNHANES)-Health examination survey. Ministry of Health and Welfare, Seoul, Korea. pp. 82-85 (2007)
20. KFDA. The Report on Annual Production of Food and Food Additive, Korea Food & Drug Administration. Seoul. Korea (2006). Available from: http://www.kfda.go.kr/index.kfda?mid=96&pageNo=4&seq=599&cmd=v Accessed June 10, 2010.
21. KFDA. Yearbook of Imported Food Inspection. Korea Food & Drug Administration. Seoul. Korea (2006). Available from: http://www.kfda.go.kr/index.kfda?mid=96&pageNo=3&seq=603&cmd=v Accessed June 05, 2010.
22. Statistics Korea, Korea Statistical Yearbook 2006, Vol 53. Statistics Korea, Seoul, Korea. p. 131 (2006)
23. WHO. Evaluation of certain food additives (51st report of the Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives). WHO Technical Report Series. No. 891. World Health Organization, Geneva, Switzerland (2000)
24. Baunwart GCMC, Toledo MCF. Estimates of the theoretical maximum daily intake of phenolic antioxidants BHA, BHT, and TBHQ in Brazil. Food Addit. Contam. 18: 365-373 (2001)