

Research Article

Open Access

폐광지역에서 생산된 백미 중 비소오염도와 확률론적 기법을 이용한 인체 위해성 평가

이지호, 김원일*, 정은정, 류지혁, 김지영, 백민경, 박병준, 임건재, 홍무기

국립농업과학원 농산물안전성부

Arsenic Contamination of Polished Rice Produced in Abandoned Mine Areas and Its Potential Human Risk Assessment using Probabilistic Techniques

Ji Ho Lee, Won Il Kim, Eun Jung Jeong, Ji Hyock Yoo, Ji Young Kim, Min Kyung Paik, Byung Jun Park, Geon Jae Im, and Moo Ki Hong (Department of Crop Life Safety, National Academy of Agricultural Science, Rural Development Administration, Suwon 441-707, Korea)

Received: 12 January 2011 / Accepted: 18 February 2011

© The Korean Society of Environmental Agriculture

Abstract

BACKGROUND: This study was conducted to investigate the arsenic (As) contaminations in polished rice cultivated nearby abandoned mine areas, and to estimate the potential health risk through dietary intake of As-enriched polished rice in each age-gender population.

METHODS AND RESULTS: The As contents in polished rice grown fifteen abandoned mine areas were analyzed. The average daily intake (ADD) as well as probabilistic health risk were estimated by assuming probability distribution of exposure parameters. The average total As concentration in polished rice was 0.09 ± 0.06 mg/kg with a range of 0.02~0.35 mg/kg. For health risk assessment, the ADD values in all age-gender populations did not exceed the provisional tolerable daily intake (PTDI) of 2.1 $\mu\text{g}/\text{kg}$ b.w./day for inorganic As. Cancer risk probability (R) values were $2.45 \sim 3.28 \times 10^{-4}$ and $2.51 \sim 5.75 \times 10^{-4}$ for all age population and gender population, respectively. Particularly, the R value, 5.75×10^{-4} , for children less than six years old were estimated to be high. Hazard quotient (HQ) values were 0.23~0.31 and 0.11~0.33 for general

population and age-gender population, respectively.

CONCLUSION(s): The average R values assessed via intake of polished rice cultivated in abandoned mine areas exceeded the acceptable cancer risk of $10^{-6} \sim 10^{-4}$ for regulatory purpose. Considering the HQ values smaller than 1.0, potential non-cancer toxic effects may not be caused by the long-time exposure through intake of As-contaminated polished rice.

Key Words: Abandoned mines, Arsenic, Cancer risk probability, Hazard quotient, Polished rice

서론

국내 광산 활동으로 인해 생성된 광 폐기물은 강우와 바람에 의해 토양 및 농경지로 확산되고, 광산폐수가 폐석더미 하부에 있는 하천으로 유입 되어 농경지와 농산물을 오염 시킨다 (Liao *et al.*, 2005; Liu *et al.*, 2010). 폐광산 인근 지역에 적재되어 있는 광미 및 폐석더미는 다량의 중금속을 함유하고 있다 (Kim *et al.*, 2005). 다양한 중금속 중 비소는 낮은 농도에서도 역치가 없는 인체발암물질로 분류되고 있으며, 만성적으로 장기간 노출되었을 경우에는 피부, 폐, 간, 신장, 방광 조직 등의 암을 유발하는 것으로 알려져 있다 (US EPA, 1998; IARC, 2004). 비소의 주요 노출경로는 식품과 음용수의 섭취이며 (WHO, 2001), 1967년 WHO에서는 총 비소의 일일 최대 섭취허용량을 50 $\mu\text{g}/\text{kg}$ b.w.-day로 설정하였고, 그

*교신저자(Corresponding author):

Tel: +82-31-290-0527 Fax: +82-31-290-0506

E-mail: wikim721@korea.kr

이후 1989년에 The Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives (JECFA)에서 독성이 강한 무기비소의 주간잠정최대섭취허용량 (provisional tolerable weekly intake; PTWI)을 15 $\mu\text{g}/\text{kg}$ b.w.-week로 설정하였으며 (WHO, 1989), 2010년에는 비소의 PTWI값을 삭제한 후 재설정을 검토 중에 있다 (JECFA, 2010).

최근 폐광산 지역의 비소로 오염된 토양 및 지하수는 주변 농작물을 오염시키고, 오염된 농산물의 인체 독성 문제들이 제기되고 있다 (Alam *et al.*, 2003; Huang *et al.*, 2007; Khan *et al.*, 2008; Rahman *et al.*, 2008). 비소로 오염된 관개수를 이용하여 재배된 쌀 중의 비소 함량은 최대 7.5 mg/kg 까지 검출되었다 (Liao *et al.*, 2005). 오염 정도가 심한 토양에서는 벼에 대한 비소의 유효도가 높으므로 다량의 비소가 쌀에 축적되며, 이를 지속적으로 섭취할 경우 인체 독성이 유발된다 (Williams *et al.*, 2007; Ma *et al.*, 2008). 따라서 폐광산 인근 지역의 농경지에서 생산된 쌀을 섭취한 경우, 해당 지역 거주민의 발암 및 비발암 위해성이 더 높을 것으로 예측된다. 비소 함량이 높은 백미 섭취에 따른 인체 위해성은 연령과 성별에 따라 다르게 나타나는데, 이는 비소 노출량에 대한 소화, 흡수, 대사과정에서 약물동력학적 현상이 상이하기 때문이다 (Ginsberg, 2003; US EPA, 2005; Goodman *et al.*, 2010).

일반 지역에 비해 폐광산 인근 지역의 비소로 오염된 논토

양에서 생산된 백미를 섭취한 사람들의 위해 영향 가능성 문제가 제기되면서, 이들에 대한 정확한 발암 및 비발암 위해성 평가가 필요한 실정이다. 따라서 본 연구는 폐광지역 주변에서 경작된 백미 중 비소 오염도를 조사하고 백미 섭취에 따른 평균 일일 노출량을 연령과 성별에 따라 산정하여, 비소의 발암 및 비발암 인체위해성을 결정하고자 한다.

재료 및 방법

공시 시료

2008년 환경부에서 실시한 100개 폐광산 주변지역 토양 및 수질 오염실태 정밀조사 결과에서 오염 개연성이 비교적 높아 향후 복원이 필요한 II 등급 광산을 중심으로 15개 폐광 지역을 조사대상지점으로 선정하였다. 조사대상 폐광 지역에서 각 광산으로부터 100~1,000 m 반경 내의 논토양에서 채배된 벼 시료를 2009년 11월에 채취하였다. 각 광산별로 SD 지점은 5개, CY 지점은 5개, NS 지점은 4개, JA 지점은 4개, YA 지점은 3개, DD 지점은 2개, GS 지점은 3개, DH 지점은 5개, KG 지점은 4개, KR 지점은 5개, MB 지점은 5개, GK 지점은 2개, SJ 지점은 3개, DY 지점은 3개, PJ 지점은 2개로 총 15지점 55개 벼 시료를 채취하였다. 조사 대상 폐광 지역의 광물 종류, 오염원으로서 광미, 폐광석 양, 그리고 갯

Table 1. Characteristics of the fifteen abandoned mines selected in this study

Mines	Mineral type	Sources		
		Tailing	Waste rock	Mine water
		m^3	m^3	Spot
SD	Au	-	200	2
CY	W, Mo	-	5,000	1
NS	Au, Ag, Cu, Pb	-	-	2
JA	Au, Ag, Cu	-	-	1
YA	Au, Ag	30	262	1
DD	Au, Ag, Pb, Zn	-	20	2
GS	Cu	-	3,000	4
DH	Cu, Pb	-	10	3
KG	Au, Ag, Cu, Pb, Zn	-	4,000	2
KR	Au, Ag	-	270	2
MB	Au	-	800	3
KK	Au, Ag, Cu	750	1,260	2
SJ	Mn	75,000	-	0
DY	Fe	-	200,000	0
PJ	Au	-	-	0

내 수의 특징을 Table 1에 나타내었다.

백미 중의 비소 분석

수확한 벼 시료를 풍건한 후 백미로 도정하였고, 1분 동안 자동 균질기를 사용하여 고운 가루로 빻아서 실온에 보관하였다. 백미 시료 0.5 g을 고압 폴리테트라플로로에틸렌 용기에 옮긴 후, 70% HNO₃ 8 mL와 H₂O₂ 1 mL를 각각 주입하였다. microwave digestion system (ETHOS, Milestone, Italy)을 이용하여 분해시킨 후 0.45 μm의 여과지로 여과하여 25 mL까지 정용 하였다. 비소는 유도결합플라즈마 질량분석법 (ICP-MS, Agilent Technologies, 7500a)으로 분석하였다.

위해성 평가

비소로 오염된 백미 섭취에 따른 평균일일노출량 (Average Daily Dose; ADD)은 다음과 같은 식에 의해 산출하였다 (US EPA, 1989).

$$ADD \text{ (mg/kg-day)} = \frac{C_t \times P_{Asi} \times IR \times FI \times EF \times ED}{W_{AB} \times AT} \quad (1)$$

- C_t: 백미 중 총 비소 농도
(Total As concentration in polished rice, mg/kg)
- P_{Asi}: 백미 중 무기비소의 비율
(Proportion of inorganic As in polished rice)
- IR: 백미 섭취율
(Ingestion rates of polished rice, kg-day)
- FI: 백미 섭취 흡수계수
(Absorption constant for polished rice intake; 1)
- EF: 노출빈도 (Exposure frequency, days/year)
- ED: 노출 기간 (Exposure duration, years)

W_{AB}: 평균 체중

(Average body weight of exposed person, kg)

AT: 평균 노출 시간 (Average Time, days)

비소의 위해성 평가는 Crystal ball program ver. 11.1.1 (Colorado, Denver, USA)을 이용하여 각 변수들의 확률분포에 의한 확률론적 기법으로 산출하였다. 백미 섭취에 의한 연령 및 성별 ADD값을 산정하기 위해 사용된 입력 변수는 Table 2와 3에 제시하였다. 백미 중 비소 오염도는 총 비소 농도 자료를 이용하였으며, 백미의 평균무기비소비율 (P_{Asi}) 57.4%를 적용하여 ADD값을 산출하였다 (Paik *et al.*, 2010a). 성별 및 연령별 백미섭취율은 2005년 국민건강영양조사 제3기 영양조사보고서 자료를 활용하였다. 노출빈도는 주거 및 농업 지역에 거주하는 사람들이 비소에 노출되는 총일수인 365일을 적용하였다 (US EPA, 1997). 노출기간은 오염물질에 노출되는 총 연수를 의미하며, 발암물질의 경우 평생을 두고 노출된다고 가정하여 평균 기대수명인 70년을, 비발암 물질의 경우에는 개인이 한곳에 거주하는 기간의 95% 상한치를 30년으로 보고 성인은 30년, 1~2세는 2년, 3~6세는 4년, 7~12세는 6년, 13~19세는 7년을 적용하여 ADD값을 산정하였다 (한국형 노출지수 개발 및 운용체계 연구보고서, 2007). 성별 및 연령별 체중 자료는 2005년 제3기 국민건강영양조사 (2007) 및 제 4기 2차년도 국민건강영양조사 (2008)의 자료를 근거로 하여 적용하였으며, 기대수명은 2005년 통계청 생명표 자료를 활용하였다.

백미 섭취에 의한 ADD의 확률 분포값을 이용하여 인체 위해확률분포의 평균값, 5th percentile값, 95th percentile값을 나타내었고, 발암위해확률은 허용범위인 10⁻⁶~10⁻⁴ 수준과 비발암독성위험값은 1.0을 기준으로 하여 인체 위해성을 평가하였다.

Table 2. The published input parameters and dose response assessment for As used in this study

Input parameter	Symbol	Unit	Probability Distribution	Value	Source
Total As conc. in polished rice	C _t	mg/kg	Lognormal	0.093 ± 0.059	Measured data
Proportion of inorganic As in polished rice	P _{Asi}	%	Lognormal	57.4 ± 0.7	Paik et al., 2010a
Intake rate of polished rice	IR	g/day	Lognormal	Age-gender category (Table 3)	MOHW, 2005
Absorption constant of polished rice intake	FI	Unitless	Point	1	MOE, 2009
Average body weight	W _{AB}	kg	Point	Age-gender category (Table 3)	KNHANES, 2007, 2008
Cancer slope factor	SF	(mg/kg)/day	Point	1.5	US EPA, 1998
Oral chronic reference dose value	RfD	mg/kg-day	Point	3×10 ⁻⁴ (adult) 1×10 ⁻⁴ (children/infants)	US EPA, 1998 NRDC, 2001

Table 3. The average body weight, intake rate of polished rice, and exposure duration for age-gender population

Category	Classification	Average body weight	Intake rate of polished rice	Exposure duration for non-carcinogens
		kg	g/day	residential years
Gender	General	55.01 ± 17.76	205.7 ± 2.0	30
	Male	57.04	227.1 ± 2.5	30
	Female	51.56	183.9 ± 2.2	30
Age (year)	1~2	12.39 ± 2.13	86.9 ± 4.1	2
	3~6	19.38 ± 4.09	134.6 ± 3.0	4
	7~12	36.65 ± 11.36	186.5 ± 3.8	6
	13~19	58.56 ± 12.84	199.7 ± 5.0	7
	20~29	62.87 ± 13.43	190.9 ± 4.5	30
	30~49	63.58 ± 11.50	211.9 ± 2.7	30
	50~64	62.31 ± 9.83	238.4 ± 3.8	30
	>65	57.38 ± 9.99	243.5 ± 4.1	30

발암위해가능성 (R)은 다음 수식에 의해 결정되었다 (US EPA, 1989).

$$R=1-\exp(-SF \times ADD) \quad (2)$$

R: 발암위해가능성 (Cancer risk probability)

SF: 발암잠재력
(Cancer slope factor, 1.5 (mg/kg)/day)

ADD: 백미 섭취를 통한 평균일일노출량
(mg/kg-day)

발암위해확률은 평생 동안 비소로 오염된 백미를 섭취하여 암을 유발할 가능성을 의미한다. 이를 결정하기 위한 용량-반응 자료로 발암잠재력은 연령과 성별에 관계없이 1.5 (mg/kg)/day를 적용하였다 (US EPA, 1998). US EPA (2005) 보고에 따르면, 어린 시기의 노출은 돌연변이원성의 기작을 통해 동일한 농도로 노출되었을 때, 성인에 비해 높은 발암 위해성을 보여준다고 한다. 그러나 비소는 돌연변이원성에 의한 발암성 기전에 대한 연구결과가 명확하게 밝혀지지 않아서 본 연구에서는 Age Dependent Adjust Factor를 고려하지 않았다.

비발암독성위험quotient(Hazard Quotient; HQ)은 ADD값과 참고치 (reference dose RfD)를 비교하여 다음 수식에 의해 결정되었다 (US EPA, 1998).

$$HQ = \frac{ADD}{RfD} \quad (3)$$

HQ: 위해성 지수 (Hazard Quotient)

RfD: 경구를 통한 참고치 (Oral reference dose value, 3×10^{-4} mg/kg-day)

RfD값은 피부의 과다색소침착과 각화증 및 관다발계 독성 영향에 대한 수치로 US EPA IRIS에서 제공한 3×10^{-4} mg/kg-day를 적용하여 비발암독성위험quotient을 산출하였다 (US EPA, 1998). 어린이 집단에 대한 RfD값은 성인에 비해 약 3배 정도 낮은 값인 1×10^{-4} mg/kg-day를 적용하였다 (NRDC, 2001).

결과 및 고찰

백미의 비소 오염도

15 지점의 폐광산 인근 지역에서 경작된 백미에 함유된 총 비소 농도는 최소 0.02 mg/kg에서 최대 0.35 mg/kg 범위로 검출되었으며, 평균 농도는 0.09 ± 0.06 mg/kg이었다 (Table 4). 국내에서는 백미에 대한 총 비소 유해관련 기준이 설정되어 있지 않기 때문에 기준치 초과율을 산출할 수는 없었으나, 총 비소 평균 농도는 일반 농경지에서 재배된 백미의 농도 수준과 유사하게 조사되었고 (국립환경과학원 연구보고서, 1988), 국내 폐광산 지역에서 보고된 평균 농도와도 일치한 수준을 보여 주었다 (Paik *et al.*, 2010b). 그러나 MB 폐광산 주변에서 경작된 백미의 경우 비소 농도는 최대 0.35 mg/kg까지 검출되었고, 이러한 결과는 Zavala and Duxbury (2008)에서 보고한 백미 중 비소의 세계적인 정상수준 범위인 0.082~0.202 mg/kg를 초과하였다. 국외에 함유된 비소의 최대 농도범위 (0.24~0.26 mg/kg)와 비교했을 때 약간 높은 수준으로 검출되었다 (Qian *et al.*, 2010). 방글라데시에서 고농도 비소로 오염된 토양 및 관개수의 영향을 받은 환경에서 재배된 백미 중 비소 농도 범위 0.16~0.58 mg/kg 내의 높은 수준이다 (Alam *et al.*, 2002). 이 지점에서 측정된 농경지 토양 및 지하수의 비소 농도는 토양 우려 및 대책 기준과 지하수 기준을 초과하는 것으로 나타났다 (환경부, 폐금속 광산 토양 오염실태 정밀조사, 2008, 2009).

Table 4. Content of total As in polished rice cultivated in paddy fields around abandoned mine sites

Mine	Sampling sites	Mean±SD	Minimum		Maximum
			----- mg/kg -----		
SD	5	0.13 ± 0.03	0.09		0.17
CY	5	0.06 ± 0.03	0.03		0.09
NS	4	0.10 ± 0.02	0.07		0.12
JA	4	0.08 ± 0.07	0.02		0.18
YA	3	0.10 ± 0.07	0.03		0.18
DD	2	0.08 ± 0.02	0.07		0.10
GS	3	0.05 ± 0.003	0.04		0.05
DH	5	0.06 ± 0.02	0.04		0.08
KG	4	0.08 ± 0.04	0.05		0.13
KR	5	0.11 ± 0.07	0.02		0.20
MB	5	0.13 ± 0.13	0.03		0.35
KK	2	0.06 ± 0.02	0.04		0.07
SJ	3	0.11 ± 0.06	0.07		0.17
DY	3	0.11 ± 0.06	0.04		0.15
PJ	2	0.16 ± 0.03	0.14		0.18

Table 5. The average daily dose (ADD) for populations exposed to As-contaminated polished rice in the age-gender category

Category	Classification	Carcinogens			Non-carcinogens		
		5th percentile	Mean	95th percentile	5th percentile	Mean	95th percentile
		$\mu\text{g}/\text{kg b.w.-day}$			$\mu\text{g}/\text{kg b.w.-day}$		
Gender	General	0.06	0.22	0.52	0.03	0.09	0.23
	Male	0.06	0.20	0.44	0.03	0.09	0.19
	Female	0.05	0.16	0.36	0.02	0.07	0.15
Age (year)	1 ~ 2	0.12	0.38	0.86	0.00	0.01	0.02
	3 ~ 6	0.12	0.38	0.87	0.01	0.02	0.05
	7 ~ 12	0.08	0.30	0.70	0.01	0.03	0.06
	13 ~ 19	0.06	0.19	0.43	0.01	0.02	0.04
	20 ~ 29	0.05	0.17	0.38	0.02	0.07	0.16
	30 ~ 49	0.06	0.18	0.41	0.02	0.08	0.18
	50 ~ 64	0.06	0.21	0.46	0.03	0.09	0.20
>65	0.07	0.23	0.52	0.03	0.10	0.23	

이는 폐광지역 주변 비소로 오염된 논토양에서 경작한 백미 중 총 비소 함량이 증가되는 연구결과와도 일치 한다 (Huang *et al.*, 2007).

인체 위해성 평가

백미 섭취경로에 따른 성별 및 연령별 ADD값은 무기비소의 비율을 고려하여 산정한 값으로 Table 5에 제시하였다. 독성이 강한 무기비소는 완전한 생물학적 유효도 (absolute bioa-

availability)가 100%로 As(III)는 103.9±25.8%, As(V)는 92.5±22.3%로 유기비소의 생물학적 유효도인 33%에 비해 높다 (Juhász *et al.*, 2006). 따라서 총 비소 노출에 대한 발암 및 비발암위해확률은 무기 비소의 위해확률에 비해 과소평가 될 수 있다.

쌀의 무기비소의 함량은 경작지 재배 조건과 품종에 따라 10~90%로 다양하다 (William *et al.*, 2005). 특히 폐광산의 영향을 받은 논토양에서 경작된 쌀에 함유된 무기비소의 평균 비율은 83%로 높게 나타났으며, 무기비소 기준의 일 노출량은 3.8 As_i μg/kg b.w.-day로 FAO/WHO에서 설정한 일일 잠정 최대 섭취 허용량 2.1 As_i μg/kg b.w.-day에 비해 유의하게 높게 조사되었다 (Zhu *et al.*, 2008)

발암 영향에 대한 남성 및 여성의 평균 ADD값은 각각 0.20과 0.16 μg/kg b.w.-day이었고, 55%와 45%의 노출 기여도를 보여주었으나, 성별에 따른 유의한 차이는 나타나지 않았다 (p>0.05). 백미 섭취를 통한 모든 연령그룹의 ADD값 확률 분포는 5th percentile 값 0.05~0.12 μg/kg b.w.-day), 평균값 0.17~0.38 μg/kg b.w.-day), 95th percentile 값 0.38~0.87 μg/kg b.w.-day로 나타났다. 전 연령 집단의 ADD값은 FAO/WHO에서 무기 비소를 기준으로 하여 설정한 2.1 μg/kg b.w.-day의 PTDI를 초과하지 않은 것으로 조사되었다. 그러나 12세 이하의 어린이 집단에서의 ADD평균값과 95th percentile 해당값은 각각 0.30~0.38 μg/kg b.w.-day, 0.70~0.87 μg/kg b.w.-day로 산정되었으며, 13~19세 청년 및 20세 이상의 성인집단에 비해 다소 높은 값을 보여주었다. 12세 이하의 어린이 집단은 15~19%의 노출 기여도를 나타내었고, 13~19세 청년과 20세 이상의 성인집단과 비교했을 때 통계적으로 유의한 차이를 보여주었다 (p<0.05). 또한 65세 이상의 성인 집단의 평균 및 95th percentile 값은 각각 0.23 및 0.52 μg/kg b.w.-day로 성인 연령 집단 중에서는 비교적 높게 산정되었다. 비발암독성영향을 나타내는 ADD값은 연령별로 다른 노출기간을 적용하여 산정하였고, 성인집단은 한 장소에 거주하는 기간의 95% 상한치를 30년으로 가정하여 산정하였다. 비발암 독성영향을 산정하기 위해 필요한 남성 및 여성의 ADD값의 범위는 0.02~0.23 μg/kg b.w.-day이었고, 성별에 따른 유의한 차이는 없었다 (p>0.05). 연령별 ADD 평균값은 0.01~0.10 μg/kg b.w.-day로 산정되었고, 연령이 높아짐에 따라 증가하였다. 20세 이상 성인집단의 ADD값은 어린이 집단에 비해서 유의하게 높았고 (p<0.05), 평균 노출 기여도는 17~24%로 조사되었다. 그러나 전반적으로 비발암성 물질에 대한 ADD값 또한 2.1 As_i μg/kg b.w.-day PTDI에 비해 매우 낮았다.

백미 섭취경로에 따른 연령 및 성별 발암위해확률(R)과 비발암독성위험값 (HQ)을 Fig. 1에서 제시하였다. 전 인구집단과 성별에 따른 백미 섭취 노출 발암위해확률분포의 평균값은 2.45~3.28×10⁻⁴으로 허용 수준인 10⁻⁶~10⁻⁴을 초과하는 것으로 조사되었다. 남성과 여성의 발암위해확률분포의 평균값은 각각 3.00×10⁻⁴와 2.45×10⁻⁴으로 여성에 비해 남성의 발암위해성이 다소 높았지만, 성별에 따른 유의한 차이는 없었다 (p>0.05). 연령별 발암위해확률 또한 평균값은 2.51~5.75×10⁻⁴

범위, 95th percentile 값은 5.75×10⁻⁴~1.30×10⁻³로 결정되었고, 10⁻⁶~10⁻⁴의 허용범위를 초과하는 것으로 나타났다. 12세 이하의 어린이와 65세 이상의 성인 집단에서는 발암위해확률의 5th percentile 값 (1.05×10⁻⁴~1.76×10⁻⁴)도 10⁻⁴ 수준을 초과하였다. 또한 연령별 평균발암위해성을 비교해보면, 12세 이하의 어린이 집단에서 4.43×10⁻⁴~5.75×10⁻⁴ 범위로 결정되었고, 이는 13~19세 청년과 20세 이상의 성인집단에 비해 약 1.5~2.0 배 높은 발암위해성을 보여주었다. 특히 6세 이하의 매우 어린 시기 동안 비소로 오염된 백미 섭취 노출에 대한 발암위해확률의 평균값은 5.75×10⁻⁴으로 가장 높았고, 극단적으로 백미를 섭취하는 경우를 고려한 95th percentile 값은 1.3×10⁻³으로 1,000명당 1.3명의 매우 높은 발암위해 가능성을 보여주었다. 0~6세의 유아 시기의 평균적인 노출이 그 이상의 인구집단에 비해 상대적으로 높다고 한다 (Tsuji *et al.*, 2004). 어린 시기에 노출될 경우 성인에 비해 단위 체중 당 섭취율이 높기 때문에 동일한 노출 농도에서 일일 노출량이 증가하게 된다 (Zaldivar, 1977). 위 결과는 성인집단에 비해 어린 시기의 노출에 대한 민감성을 고려하여 발암 위해성을 평가할 것 필요성이 있음을 보여준다. 어린이 집단의 백미 섭취노출 발암위해확률은 평균값으로 산정했을 때, 발암위해허용수준을 모두 초과하는 것으로 나타났다. 어린 시기의 노출에 따른 발암위해성은 그 이후 평생 기간의 노출수준을 성인과 비교했을 때, 평균 약 10배 정도 높은 것으로 조사되었다 (Ginsberg, 2003). 이러한 연구결과에 의해 성인의 발암성 자료를 근거로 어린이 집단의 발암성을 평가할 경우에는 노출 시기별 독성의 민감도를 보정할 수 있는 ADAF (Age

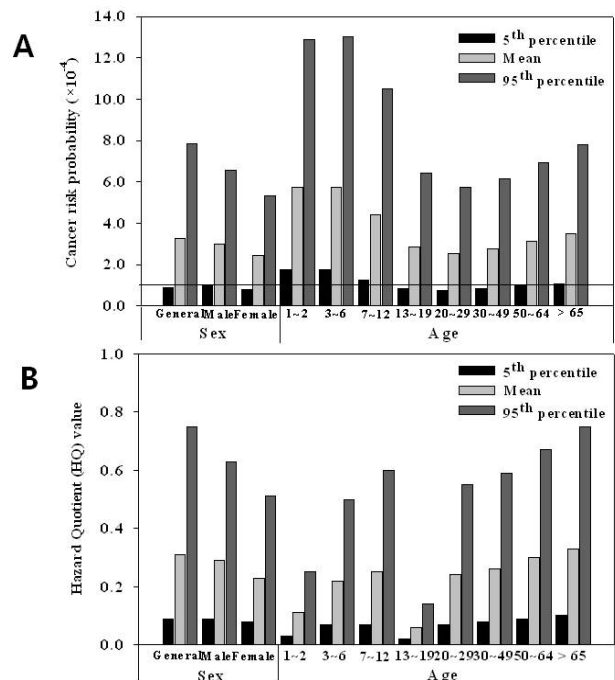


Fig. 1. The carcinogenic risk probability (A) and hazard quotient value (B) via As-contaminated polished rice intake in the age-gender population.

Dependent Adjust Factor)를 적용하여 평가할 것을 제안하고 있다 (US EPA, 2005). 그러나 이러한 ADAF값을 적용하는 물질은 돌연변이원성의 작용 기작을 통해 암을 유발하는 화학물질로 제한하기 때문에, 비소는 돌연변이원성의 기작에 의한 발암성 근거가 충분치 않은 것으로 증명되었다. 따라서 비소의 명확한 발암기전을 밝히기 위한 충분한 연구 자료를 확보하여 어린 시기의 노출에 대한 발암위해성 평가의 재검토가 필요함을 제안하고 있다 (US EPA, 2005). 성인 집단의 발암위해확률의 평균값은 $2.51\sim 3.47\times 10^{-4}$ 범위, 95th percentile 값은 $5.75\sim 7.80\times 10^{-4}$ 범위로 결정되었고, 성인 연령군에서는 65세 이상의 사람들의 섭취 노출 발암위해확률의 평균값이 높게 산출되었다.

비발암독성위험값 (HQ)을 산출한 결과는 Fig. 1에 제시하였다. 전반적으로 전 연령 및 성별 HQ값의 5th percentile, 평균값, 95th percentile값 모두 1.0을 초과하지 않았다. 전 인구집단, 남성, 여성의 HQ 평균값은 각각 0.31, 0.29, 0.23 이었고, 95th percentile 값은 0.75, 0.63, 0.51로 평가되었다. 남성의 비발암독성값이 약간 컸지만 통계적으로 유의한 차이는 없었다 ($p>0.05$). 위 독성값은 주로 체중과 백미 섭취량에 의해서 산정된 ADD값에 의존적이나, 그 외에도 사회경제적인 다양한 변수들의 불확실성이 존재 할 수 있기 때문에 이러한 변수들을 고려한 위해성 평가 또한 필요하다 (Goodman *et al.*, 2010). 연령별 HQ 평균값을 살펴보면, 12세 이하의 어린이 집단에서 0.11~0.25, 20세 이상의 성인 집단에서 0.24~0.33으로 산출되어 성인 연령이 증가함에 따라 HQ 값이 증가하는 것으로 조사되었다. 이는 어린이 집단의 노출 기간이 20세 이상의 성인집단에 비해 짧게 산정된 결과이다. 독일에서는 연령별 1세 이하는 1년, 1~3세는 3년, 4~8세는 5년, 9~16세는 8년, 16세 이상은 30년의 노출 기간을 적용하여 비발암 물질의 위해성을 평가하고 있다 (Stubenrauch *et al.*, 1997). 어린이 및 유아집단의 비발암독성값을 결정하기 위한 RfD값은 피부 과다색소침착, 각화증 및 혈관계 독성영향의 임계점에 대한 무영향관찰용량 (No Observed Adverse Effect Level; NOAEL) 0.0008 mg/kg-day 값에 불확실성 상수(uncertainty factor)를 3 대신 10으로 증가시켜 성인에 비해 약 3배정도 낮은 oral RfD값으로 적용하여 산출하였다 (US EPA, 1998). 어린이와 유아는 성인에 비해 낮은 체중과 큰 감수성으로 인해 인체 위해 영향에 대해 민감한 집단으로 알려져 있다 (Qian *et al.*, 2010). 따라서 어린 시기의 노출에 대한 용량-반응 독성자료를 이용하여 민감도를 고려할 수 있는 과정이 필요하다 (Zaldivar, 1977; US EPA, 2005; Meharg *et al.*, 2008). 성인에 비해 어린이는 유해물질의 체내 반감기가 약 5배 정도 지연되어 약물대사과정이 다르다 (Ginsberg, 2003). 어린이 및 유아 시기의 노출을 고려한 어린이 용량-반응 자료를 적용해서 불확실성을 최소화할 것을 제안하고 있다 (NRDC, 2001).

폐광지역에서 경작된 비소로 오염된 백미를 섭취했을 경우, 발암 및 비발암 위해성을 정량적으로 평가하는 데 있어 몇 가지 제한점이 있다. 첫째, 생쌀 (raw rice)의 섭취 경로만을 고려한

연령과 성별 비소 노출에 대한 발암 및 비발암 위해성을 과소 평가될 수 있다. 사람들은 쌀밥을 섭취하기 때문에, 쌀 섭취와 동시에 요리할 때 넣은 물의 섭취 노출에 따른 위해 가능성을 배제할 수 없다. 특히 10 $\mu\text{g}/\text{L}$ 이상의 비소로 오염된 물을 이용하는 경우 쌀밥의 비소 농도는 생쌀에서 검출된 비소 농도와는 상관성이 낮았고, 쌀밥 내 비소 농도는 밥을 지을 때 넣은 물의 비소 농도에 의존하는 것으로 조사되었다 (Mondal *et al.*, 2008). 따라서 광산 인근 지역에서 재배한 쌀밥 내 비소 오염도를 고려한 섭취 노출의 위해성을 평가하는 것이 보다 정확할 것으로 판단된다. 둘째, 우리나라 폐광산 15지점 주변에서 경작된 백미 55점의 시료에 대한 위해성을 평가한 결과 이므로, 국내 전 광산 인근 지역에서 재배한 백미 섭취 노출에 대한 위해성을 대표할 수 없는 한계가 있다. 셋째, 백미 섭취를 통한 비소 노출의 위해성을 평가할 때, 무기비소 함량을 고려한 ADD값을 산정하였지만, 무기비소에 대한 발암력 및 참고치는 적용하지 못한 제한점이 있다. 비소 중별로 독성 및 생물학적유효도는 다양하다 (Juhasz *et al.*, 2006). 특히 무기비소는 유기비소에 비해 독성이 10~100배 높고, 생물학적 유효도 또한 약 3배 정도 높은 약 90%에 이른다. 따라서 무기비소에 대한 발암잠재력 및 참고치가 개발되어 적용된다면 신뢰성 있는 인체 위해성을 평가할 수 있을 것으로 판단된다. 넷째, 어린이 및 유아시기에 비소로 오염된 백미를 섭취한 경우, 이들의 민감성을 고려한 발암위해가능성을 평가하지 못했다. 비소는 국제암연구소(IARC)와 미국환경보호청(US EPA)에서 인체발암물질로 분류되고 있고, 발암기전은 다양하지만 돌연변이원성 기작에 의한 발암성과는 직접적으로 관련이 없다고 보고되었다 (US EPA, 2005). 이와 반대로, Klein *et al.* (2007)의 연구에서는 비소가 약한 돌연변이 활성을 가지고 있는 것으로 나타났다. 비소의 발암 및 독성영향들이 보고되고 있지만, 정확한 발암기전을 밝히는 데 있어서는 연구 자료가 충분치 않은 것으로 조사되었다 (Sams II *et al.*, 2007). 충분한 연구 자료를 근거로 한 명확한 발암기전이 밝혀진다면, 어린 시기의 노출에 대한 민감성을 보정한 보다 더 정확한 발암 위해성 평가가 수행될 수 있을 것을 사료된다.

요 약

국내 15 지점의 폐광산 주변 지역에서 재배 생산된 백미 중 총 비소 오염도를 조사하였고, 연령과 성별에 따른 평균일일노출량(ADD)을 산정하여 발암위해확률 및 비발암독성영향을 평가하였다. 광산 인근에서 재배 생산된 백미 중 총 비소의 평균 농도는 0.09 mg/kg으로 조사되었다. ADD값은 총 비소 함량에 무기 비소의 비율을 고려하여 산정하였으며, FAO/WHO에서 정한 2.1 $\mu\text{g}/\text{kg b.w.-day}$ 의 PTDI 값을 초과하지 않았다. 그러나 광산 지역 인근에서 재배한 백미를 섭취했을 경우, 연령 및 성별 인구집단의 발암위해확률은 허용수준인 $10^{-6}\sim 10^{-4}$ 범위를 초과하였고, 특히 6세 이하 유아의 경우 평균 10,000 명당 5인 이상의 높은 발암위해확률이 있는 것으로 산정되었다. 비발암독성위험값 (HQ)은 모든 연령

및 성별 인구집단에서 1.0을 초과하지 않았으며, 따라서 폐광산 주변 지역에서 채배 생산된 백미를 장기간 섭취하더라도 비소에 의한 인체 독성이 나타날 가능성은 없는 것으로 판단된다.

감사의 글

This study was supported by 2011 Post Doctoral Course Program of National Academy of Agricultural Science, Rural Development Administration, Republic of Korea.

참고문헌

- Alam, M.G., Allison, G., Stagnitti, F., Tanaka, A., Westbrook, M., 2002. Metal concentrations in rice and pulses of Samta villiage, Bagladesh, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 69, 323-329.
- Alam, M.G.M., Snow, E.T., Tanaka, A., 2003. Arsenic and heavy metal contamination of vegetable grown in Samta village, Bangladesh, *Sci. Total Environ.* 308, 83-96.
- Ginsberg, G.L., 2003. Assessing cancer risks from short-term exposures in children, *Risk Anal.* 23, 19-34.
- Goodman, T.K., Hults, C., Billiard, S.M., Kiparissis, Y., Richard, I.D.K., Hayward, S., 2010. Health risk assessment of ochratoxin A for all age-sex strata in a market economy, *Food Addit. Contam.* 27, 212-240.
- Huang, S.S., Liao, Q.L., Hua, M., 2007. Survey of heavy metal pollution and assessment of agricultural soil in Yangzhong district, Jiangsu Province, China, *Chemosphere* 67, 2148-2155.
- IARC, 2004. Monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans, in: Some drinking water disinfectants and contaminants including arsenic, vol. 84. IARC Press, Lyon.
- Juhasz, A.L., Euan Smith, John Weber, Matthew Rees, Allan Rofe, Tim Kuchel, Lloyd Sansom, 2006. In vivo assessment of arsenic bioavailability in rice and its significance for human health risk assessment, *Environ. Health Perspect.* 114, 1826-1831.
- Khan, S., Cao, Q., Zheng, Y.M., Huang, Y.Z., Zhu, Y.G., 2008. Health risks of heavy metals in contaminated soils and food crops irrigated with wastewater in Beijing, China, *Environ. Pollut.* 152, 686-692.
- Kim, J.Y., Kim, K.Y., Ahn, J.S., Ko, I.W., Lee, C.H., 2005. Investigation and risk assessment modeling of As and other heavy metals contamination around five abandoned metal mines in Korea, *Environ. Geochem. Health* 27, 193-203.
- Klein, C.B., Leszczynska, J., Hickey, C., Rossman, T.G., 2007. Further evidence against a direct genotoxic mode of action for arsenic-induced cancer, *Toxicol. Appl. Pharmacol.* 222, 289-297.
- Liao, X.Y., Chen, T.B., Xie, H., Liu, Y.R., 2005. Soil As contamination and its risk assessment in areas near the industrial districts of Chenzhou City, Southern China, *Environ. Int.* 31, 791-798.
- Liu, C.P., Luo, C.L., Gao, Y., Li, F.B., Lin, L.W., Wu, C.A., Li, X.D., 2010. Arsenic contamination and potential health risk implications at an abandoned tungsten mine, Southern China, *Environ. Pollut.* 158, 820-826.
- Ma, J.F., Yamaji, N., Mitani, N., Xu, X.Y., Su, Y.H., McGrath, S.P., Zhao, F.J., 2008. Transporters of arsenite in rice and their role in arsenic accumulation in rice grain, *Proc. Natl. Acad. Sci.* 105, 9931-9935.
- Meharg, A.A., Sun, G.X., Williams, P.N., Adamako, E., Deacon, C., Zhu, Y.G., Feldmann, J., Raab, A., 2008. Inorganic arsenic levels in baby rice are of concern, *Environ. Pollut.* 152, 746-749.
- Mondal, D., Polya, D., 2008. Rice in a major exposure route for arsenic in Chakdaha block, Nadia district, West Bengal, India: A probabilistic risk assessment, *Appl. Geochem.* 23, 2987-2998.
- Natural Resources Defense Council (NRDC), 2001. Arsenic and old law; A scientific and public health analysis of arsenic occurrence in drinking water, its health effects, and EPA's outdated arsenic tap water standard, <http://www.nrdc.org/water/drinking/arsenic/exesum.asp>.
- Paik, M.K., Kim, M.J., Kim, W.I., Yoo, J.H., Park, B.J., Im, G.J., Park, J.E., Hong, M.K., 2010a. Determination of arsenic species in polished rice using a methanol-water digestion method, *J. Korean Soc. Appl. Biol. Chem.* 53, 634-638.
- Paik, M.K., Kim, W.I., Yoo, J.H., Kim, J.K., Im, G.J., Hong, M.K., 2010b. A probabilistic assessment of human health risk from arsenic-contaminated rice grown near the mining areas of Korea, *J. Fd. Hyg. Safety* 25, 143-147.
- Qian, Y., Chen, C., Zhang, Q., Chen, Z., Li, M., 2010. Concentrations of cadmium, lead, mercury and arsenic in Chinese market milled rice and associated population health risk, *Food Control* 21, 1757-1763.
- Rahman, M.A., Hasegawa, H., Rahman, M.M., Mazid Miah, M.A., Tasmin, A., 2008. Arsenic accumula-

- tion in rice (*Oryza sativa* L.): human exposure through food chain, *Ecotox. Environ. Safe.* 69, 317-324.
- Sams II, R., Wolf, D.C., Ramasamy, S., Ohanian, E., Chen, J., Lowit, A., 2007. Workshop overview: arsenic research and risk assessment, *Toxicol. Appl. Pharmacol.* 222, 245-251.
- Stubenrauch, S., Koschmieder, H.J., Bauer, D., Doetsch, P., Grunhoff, D., Hempfling, R., Mahr, A., 1997. The UMS system for exposure assessment in soil, *Int. J. Toxicol.* 16, 375-389.
- Tsuji, J.S., Benson, R., Schoof, R.A., Hook, G.C., 2004. Health effect levels for risk assessment of childhood exposure to arsenic, *Regul. Toxicol. Pharmacol.* 39, 99-110.
- William, P.N., Prince, A.H., Raab, A., Hossain, S.A., Feldmann, J., Meharg, A.A., 2005. Variation in arsenic speciation and concentration in paddy rice related to dietary exposure, *Environ. Sci. Technol.* 39, 5531-5540.
- Williams, P.N., Villada, A., Deacon, C., Raab, A., Figuerola, J., Green, A.J., Feldmann, J., Meharg, A.A., 2007. Greatly enhanced arsenic shoot assimilation in rice leads to elevated grain levels compared to wheat and barley, *Environ. Sci. Technol.* 41, 6854-6859.
- Zaldivar, R., Guillier, A., 1977. Environmental and clinical investigations on endemic chronic arsenic poisoning in infants and children, *Zentrabl. Bakt. Hyg. I. Abt. Orig. B.* 165, 226-234.
- Zavala, Y.J., Duxbury, J.M., 2008. Arsenic in rice: I. Estimating normal levels of total arsenic in rice grain, *Environ. Sci. Technol.* 42, 3856-3860.
- Zhu, Y.G., Sun, G.X., Lei, M., Teng, M., Liu, Y.X., Chen, N.C., Wang, L.H., Carey, A.M., Deacon, C., Raab, A., Meharg, A.A., Williams, P.N., 2008. High percentage inorganic arsenic content of mining impacted and nonimpacted Chinese rice, *Environ. Sci. Technol.* 42, 5008-5013.