한국환경보건학회지, 제43권 제4호(2017)
J Environ Health Sci. 2017; 43(4): 280-297
pISSN: 1738-4087 eISSN: 2233-8616
https://doi.org/10.5668/JEHS.2017.43.4.280
원 저 Original articles

시설 고추와 오이, 과수 재배 농업인의 유기인계 및 피레스로이드 살충제 노출 수준과 관련 농작업 특성

김신아*·노상철**†
*단국대학교병원 농업안전보건센터
**단국대학교 의과대학 직업환경의학교실

Exposure Level to Organophosphate and Pyrethroid Pesticides and Related Agricultural Factors in Chili and Cucumber Cultivation among Greenhouse and Orchard Farmers

Shinah Kim* and Sangchul Roh*,†**
**Center for Farmers' Safety and Health, Dankook University Hospital*
***Department of Occupational and Environment Medicine, College of Medicine, Dankook University*

ABSTRACT

Objectives: We assessed pesticide exposure levels according to cultivation and crop type and investigated agricultural factors related to exposure.

Methods: The participants, 341 male and 127 female farmers, were divided into three groups by cultivation crop type: chili greenhouse, cucumber greenhouse, and orchard. We collected questionnaires, socio-economic characteristics and agricultural factors, and spot urine. Pesticide exposure was examined using four organophosphate and four pyrethroids urinary metabolites: dimethylphosphate, dimethylthiophosphate, diethylphosphate, diethylthiophosphate, Cis and Trans-3-(2-2dichlorovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid, 3-phenoxybenzoic acid (3-PBA), Cis-3-(2-2dibrmovinyl)-2, and 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid. Each metabolite was summed ∑DAP and ∑PY according to the chemical class.

Results: Urinary metabolite detection rates and concentrations were similar between the greenhouse groups, but the orchard group was different. Similar 3-PBA detection rates were found in the three groups, but the geometric mean was very high in the orchard group compared to the two greenhouse groups. 3-PBA concentration in the orchard group was 4.11 μg/g creatinine; the chili and cucumber greenhouse groups were 1.27 and 1.16 μg/g creatinine, respectively. ∑DAP was significantly associated with cultivation crop type and seasonal variation, but ∑PY was not relevant.

Conclusions: Our results suggest that cultivation and crop type may be correlated with different pesticide types and exposure levels. Furthermore, seasonal factors were related as potential factors influencing the level of organophosphate metabolites, but not for pyrethroid metabolites.

Keywords: Farmers, occupational exposure, pesticides, organophosphates, pyrethrin

†**Corresponding author:** Department of Occupational and Environment Medicine, College of Medicine, Dankook University, Cheonan-si 31116, Repulic of Korea, Tel: +82-41-550-7343, E-mail: scroh@dku.edu
Received: 21 July 2017, Revised: 18 August 2017, Accepted: 19 August 2017

I. 서 론

농약의 사용은 농작물의 생산량을 증가시켜 식생활에 윤택함을 가져왔으나, 동시에 농약노출로 인한 환경과 건강에 좋지 않은 영향도 가져왔다. 농약에 의한 건강영향은 단기간 고농노로 노출되어 나타나는 급성건강영향과 저농도로 장기간 노출되어 나타나는 만성건강영향으로 나눌 수 있는데, 농업인은 직업적 특성상 장기간 저농도의 농약에 지속적으로 노출되기 때문에, 만성적인 농약노출과 건강영향에 관한 연구를 할 때 농업인이나 직업적으로 농약을 다루는 집단을 대상으로 연구하는 예가 많다. 현재까지 농약노출과 관련성이 연구된 주요 건강영향에는 비호지킨림프종과 백혈병, 전립샘암, 신장암 등의 악성종양과 내분비계 교란작용, 천식과 같은 호흡기계질환 등이 있다.[1] 국제암연구소(IARC)의 농약의 발암성 분류는 원제에 해당하는 개별 농약성분으로 분류하고 있는데,[2] 유기염소계 농약이 여러 암종의 발생 위험을 높이는 것으로 많이 연구되었으며, diazinon의 경우 폐암과 백혈병 발생의 위험을 높였으며, chlorpyrifos는 직장암 발생의 위험을 높이는 것으로 보고되는 등 유기인계 농약에서도 개별 농약과 암 발생의 관련성이 다수 보고되었다.[3]

농약노출과 건강영향의 관련성을 분석하기 위해서는 정밀한 농약노출평가가 선행되어야 한다. 사람을 대상으로 농약노출을 직접적으로 평가하는 방법으로 실제 농약을 다루는 현장에서 패치 등을 이용하여 묻어나는 양을 회수하여 측정하는 개인별 측정과 소변이나 혈액 등에서 농약 대사체를 분석하는 생체지표 측정이 있다. 특히 소변과 혈액에서 측정이 가능한 농약 대사체는 특정 농약의 종류(원제)의 노출을 의미하므로 평가 결과를 특정 원제의 노출과 연결시켜 간접적인 해석이 가능해 유용할 수 있지만, 모든 농약에 대해 생물학적 지표로 노출평가를 할 수 있는 것이 아니고 농업인이 해당 농약만 사용하는 것이 아니므로 해석에는 주의가 따른다. 그럼에도 불구하고 대사체 평가는 농약노출을 정량화 할 수 있다는 점에서 다수의 역학조사에서 농약노출 정량화 방법으로 많이 활용되고 있다. 농업에서 많이 사용되는 유기인계 농약의 경우, 미국의 등록 농약 기준으로 유기인계 농약의 75%가 유기인계 대사체인 dialkyl phosphate(DAP) 6종으로 설명이 가능하다고 했으며,[4] 우리나라 농업에서도 유기인계 농약은 많이 사용되는 상위 50위 농약 중 15종이 포함되어 있어,[5] 유기인계 농약 노출 지표로 DAP를 활용하는 것이 유용할 수 있다. 간접적인 방법으로는 농약노출 관련 변수 등을 설문으로 조사하고 이들을 조합하여 대리지표를 통해 노출량을 추정하는 것이다. 전자는 대규모 역학조사에서 활용하기에는 시간과 노력, 비용이 많이 드는 대신 객관적이고 정량적인 방법으로 노출량을 확보할 수 있으며, 후자는 응답에 의존하여 정보를 얻게 되어 발생할 수 있는 회상 오류, 오분류, 무응답 등의 문제가 있을 수 있지만 많은 대상자에게 비용효과적으로 정보를 얻을 수 있다는 장점이 있다. 그러나 이들 두 가지 접근방법은 서로 상호보완적이다. 농업인의 농약노출은 농작업 특성을 고려하는 것도 매우 중요하기 때문에 생체지표를 통해 농약노출량을 얻는다고 해도 농업종사기간, 농약사용기간, 경작면적, 재배작목, 개인 보호구의 착용, 안전수칙 준수여부 등과 같은 농작업과 관련된 요인을 반드시 고려해야 하기 때문이다. 국내 남성 농업인에서 작목에 따라 농작업 특성을 비교한 결과, 연간 평균 농약 살포횟수가 벼는 2.6회, 밭작물은 7.3회, 비닐하우스는 11.9회, 과수는 9.1회로 나타났으며, 연간 평균 농약 살포시간도 벼는 8.8시간, 과수는 37.0시간으로 작목에 따라 큰 차이를 보여,[6] 농약노출을 평가하는데 작물을 구분하는 것이 중요함을 보여줬다.

최근의 역학조사에서는 생체지표와 농약노출 설문조사를 모두 확보하는 추세이다.[7] 우리나라에서는 일부 연구에서 소규모의 농업인을 대상으로 생체지표 분석을 시도하거나 전국 규모의 농업인을 대상으로 농약중독 연구가 있었으나 설문지 위주의 역학연구였기 때문에, 많은 수의 농업인을 대상으로 생체지표와 자세한 농작업 특성 변수를 모두 확보한 역학연구가 부족한 실정이다.[8-10]

본 연구의 목적은 농업 현장에서 많이 사용되는 유기인계와 피레스로이드계 농약의 대사체를 분석하여, 농업인을 작목별로 시설재배 고추와 오이, 과수군으로 나누어 유기인계와 피레스로이드계 대사체 수준을 비교하며, 이들 대사체와 관련성을 보이는 농작업 요인이 무엇인지 분석하고자 하였다.

II. 연구방법

1. 연구대상

본 연구의 조사대상은 2014년부터 2015년까지 진행된 단국대학교병원 농업안전보건센터의 '지역사회 농업인 검진 및 설문 역학조사'에 참여한 충남 공주시와 예산군에 거주하는 농업인 이었다. 연구대상을 조사시점 기준으로 직업적 농업 종사자로 한정하기 위해 해당 지역사회의 다량 생산되는 작목을 선정하여 작목반 회원과 농협 조합원 위주로 조사하였다. 공주시의 경우 시설 작목 중 고추와 오이가 많이 생산되어 고추와 오이를 재배하는 시설 작목반 회원을 대상으로 했으며, 예산군은 사과 작목이 유명하여 예산군 능금농협의 조합원으로 한정하여 조사를 하였다. 조사의 시기는 지역별로 공주시가 2014년 9월부터 12월까지, 예산군은 2015년 7월 이었으며, 총 864명(2014년 532명, 2015년 332명)의 농업인이 참여하였다. 농약의 대사체는 특정 농약의 원제가 체내 흡수되어 배출되어 나오는 것으로 작목과 농약의 종류에 민감하므로 분석대상자 선정에서 대상자들의 작목 종류 및 농작업 특성이 유사한 집단으로 한정하기 위해 864명의 대상자에서 비직업성 농업 종사자 137명과 주요 재배 작물에 대한 정보가 없거나 농약을 많이 사용하지 않는 수도작 위주의 재배를 하는 대상자 125명, 소변 대사체 분석 결과가 없는 대상자 2명, 주요한 농작업 변수의 정보가 불충분한 대상자 115명, 인구사회학적 변수의 정보가 불충분한 대상자 5명, 농약 살포 시 착용 보호구의 정보가 불충분한 12명을 제외하여 468명을 최종 분석대상자로 선별하였다. 연구 시작 전 연구내용에 대해 단국대학교병원 연구윤리위원회(IRB)로부터 사전 승인을 받았으며(IRB no. 2014-08-003), 모든 연구대상자에게 참여 전 충분한 설명을 하여 자발적인 참여에 대한 동의서를 구득하였다.

2. 역학자료와 생체시료의 수집

모든 설문조사와 검진은 표준화된 프로토콜에 따라 수행되었으며, 설문조사와 임상검사를 시행하였다. 설문조사는 표준화교육을 받은 숙련된 면접조사원이 일대일 면접법으로 시행했으며, 인구사회학적 요인(성별, 연령, 교육수준, 결혼상태, 연간 소득, 가족 구성원 수 등), 농작업의 직업적 노출요인(농업 종사기간, 농약 사용기간, 주요 재배 작목의 종류와 경작면적, 연간 농약 살포횟수, 조사일로부터 가장 최근 농약살포를 한 날과의 간격(일), 살포방법, 살포량, 보호구 착용 종류와 빈도, 농약 살포 시 안전수칙 준수여부 등), 질병 과거력과 음주 및 흡연 등을 포함하는 생활습관요인 등으로 구성되었다.

생체시료는 혈액과 소변을 수집했으며, 대상자들에게 참여 전 임상검사를 위해 8시간 이상 공복을 유지할 것을 안내하였다. 소변은 단회뇨(spot urine)로 수집을 하여 -20°C 이하의 냉동고에 분석할 때까지 보관하였다.

3. 농약 대사체의 분석과 변수의 처리

농약의 대사체는 유기인계 4종과 피레스로이드계 4종 등 총 8종을 선정했는데, 유기인계와 피레스로이드계 농약은 우리나라 농업 현장에서 흔하게 사용되는 농약의 종류이기 때문이다. 유기인계 농약은 dimethylphosphate(DMP), dimethylthiophosphate (DMTP), dimethyldithiophosphate(DMDTP), diethylphosphate(DEP), diethylthiophosphate(DETP), diethyldithiophosphate (DEDTP) 등의 총 6가지로 대사가 되는데, 이중 DMDTP와 DEDTP는 우리나라에서 사용되지 않는 원제의 대사산물이므로 제외하였다.[11]

냉동한 소변시료는 분석 30분 전에 꺼내어 녹인 후 원심분리한 후 상층액을 사용하였다. 분석방법은 gas chromatograph/mass spectrometer(GC/MS)로 정량분석을 하였으며. 각 피크(peak)의 면적을 표준물질의 면적비로 검량선을 작성하여 시료 중 대사체의 농도를 구하였다. 분석기기는 조사시기에 따라 다른데, 2014년에 수집한 시료는 Hwelett-Packard (HP) 5890 GC에 direct interface로 연결된 HP 5973 MS이고, 시료주입은 HP 7673A autosampler를 사용하였다. 2015년에 수집한 시료는 Agilent Technologies(AG) 7000C GC/MS Triple Quad에 direcdir interface로 연결된 AG 7693 autosampler를 사용하였다. 검량선 작성과 회수율 및 검출한계를 알아보기 위해 blank로 신생아 소변을 이용하여 확인했으며, 타당성 확인을 위해 실험 전 각각의 대사체가 없는 것을 확인한 후 분석하였다.

유기인계 대사체는 DMP, DMTP, DEP, DETP 등의 4종을 분석했으며, Schetten의 분석방법을 그대로 사용하였다.[12] 2014년도 시료의 정량한계(limit of quantification, LOQ)는 DMP 0.1 μg/L, DMTP 1.0 μg/L, DEP 0.1 μg/L, DETP 1.0 μg/L였으며, 2015년도 시료는 검출한계(limit of detection, LOD)가 DMP 0.01 μg/L, DMTP 0.005 μg/L, DEP 0.01 μg/L, DETP 0.01 μg/L이었다.

피레스로이드계 대사체는 Cis와 Trans-3-(2-2dichlorovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid(Cis-DCCA, Trans-DCCA), 3-phenoxybenzoic acid (3-PBA), Cis-3-(2-2dibrmovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid(DBCA) 등 4종을 선정했으며, 분석방법은 Ueyama의 방법을 그대로 사용하였다.[13] 2014년도 시료의 LOQ는 Cis-DCCA 1.0 μg/L, Trans-DCCA 1.0 μg/L, 3-PBA 0.5 μg/L, DBCA 1.0 μg/L였으며, 2015년도 시료는 LOD가 Cis-DCCA 0.5 μg/L, Trans-DCCA 0.5 μg/L, 3-PBA 0.3 μg/L, DBCA 0.5 μg/L였다.

모든 8종의 대사체는 소변의 크레아티닌으로 보정하였으며, LOD 또는 LOQ보다 낮은 수치의 경우 LOD 또는 LOQ를 2의 제곱근으로 나눈 값으로 대체하여 사용하였다.[13] 유기인계와 피레스로이드계 대사체는 각 계열 별 4종을 합산하여 ∑DAP와 ∑PY 변수를 생성했다.

4. 통계분석

우리나라의 농작업 현장에서는 농약 살포 시 남자가 직접 살포작업을 하고 여자는 보조작업을 하는 등 역할이 달라 노출양상이 다르고, 이 연구대상에서도 남자의 97.4%가 직접 살포, 여자의 76.4%가 살포 보조작업을 하는 것으로 나타나 남녀의 농약살포시 역할 분담이 확연히 달라 모든 통계분석은 남녀를 층화하여 분석하였다. 농업인의 다수가 한 작목만 재배하는 것이 아니라 여러 종류의 작목을 하고 있었는데, 개인별로 농업특성을 검토하여 주력하는 작목을 기준(경작면적, 작목 종류 등)으로 시설 고추 재배군(시설 고추군), 시설 오이 재배군(시설 오이군), 사과와 기타 과수 재배군(과수군) 등 3개 군으로 나누어 비교하였다.

연구 대상자의 일반적 특성 및 농작업 변수의 특성은 범주형 변수는 카이제곱검정을 하였고, 연속형 변수는 분산분석으로 분석하였다. 소변의 농약 대사체의 검출률의 군간 차이는 카이제곱검정, 농도 분포의 검정은 분산분석으로 분석했으며, 농약 대사체와 농작업 변수의 상관성은 Spearman의 비모수 상관분석을 이용하였는데 연령을 통제변수로 넣었다. 농약 대사체 ∑DAP와 ∑PY와 관련성을 보이는 농작업 변수를 알아보기 위해 다변량 선형회귀 분석을 실시하였으며, 상관분석과 회귀분석 모형에 포함된 변수는 정규성 분포를 확인하여 지나치게 치우친 변수의 경우 로그변환하여 사용하였다. 모든 통계분석은 신뢰구간 95%(α-error=0.05) 수준에서 양측검정했으며, 통계프로그램은 SPSS 23.0 version을 이용하였다.

III. 결 과

1. 연구 대상자의 일반적 특성

본 연구의 대상자의 일반적 특성은 Table 1과 같다. 연구 대상자의 조사시기는 작목별로 차이가 있는데, 시설 고추군은 2014년 9-10월 사이에 남자와 여자가 각 88.9%, 94.4%가 조사되었으며, 시설 오이은 2014년 12월에 남자와 여자가 각각 57.1% 조사되었다. 과수군은 모두 2015년 7월에 조사가 되었다. 연구 대상자의 연령 평균은 남자에서 시설 고추군이 62.5±6.4세, 시설 오이군이 55.9±10.4세, 과수군이 64.9±8.5세였으며, 연령군으로는 시설 고추군과 과수군이 60대가 각 46.3%, 50.0%로 가장 많았으며, 시설 오이군은 50대 연령군이 가장 많았다. 시설 오이군의 연령이 상대적으로 낮았으며 이는 통계적으로도 유의하였다(p<0.001). 여자 농업인에서도 연령평균과 분포는 남자와 비슷하였고 시설 오이군의 연령이 다른 두 개 군에 비하여 낮았다(p<0.001).

2. 연구 대상자의 농작업 변수의 특성

본 연구 대상자의 농작업 특성은 Table 2와 같다. 남자 농업인 기준으로 살펴보면, 작목의 재배면적(m^2) 평균은 과수군이 16,532±11,618 m^2로 가장 넓었으며(p<0.001), 농업 종사 기간과 농약 사용 기간은 각각 38.76±14.19년, 35.39±12.62년으로 시설 고추군이 가장 길었고, 시설 오이군이 가장 짧았다(순서대로 각 p=0.016, p=0.004). 연간 농약살포의 횟

Table 1. General characteristics in chili and cucumber cultivation among greenhouse and orchard farmers

		Men							Women						
		Greenhouse* farmers				Orchard farmers			Greenhouse farmers				Orchard farmers		
		Chili (n=54)		Cucumber or other vegetables (n=91)		Apple or other fruits (n=196)		*p*-value†	Chili (n=36)		Cucumber or other vegetables (n=28)		Apple or other fruits (n=63)		*p*-value
		n	%	n	%	n	%		n	%	n	%	n	%	
Survey period	Sep.-Oct. 2014	48	88.9	39	42.9	0	-	<0.001	34	94.4	12	42.9	63	100.0	<0.001
	Dec. 2014	6	11.1	52	57.1	0	-		2	5.6	16	57.1	0	-	
	Jul. 2015	0	-	0	-	196	100.0		0	-	0	-	0	-	
Age, years	20-49	1	1.9	17	18.7	11	5.6	<0.001	1	2.8	9	32.1	1	1.6	<0.001
	50-59	20	37.0	39	42.9	37	18.9		15	41.7	11	39.3	19	30.2	
	60-69	25	46.3	31	34.1	98	50.0		16	44.4	7	25.0	28	44.4	
	70 and more	8	14.8	4	4.4	50	25.5		4	11.1	1	3.6	15	23.8	
Education	Less than primary school	6	11.1	5	5.5	3	1.5	<0.001	6	16.7	2	7.1	5	7.9	0.257
	Elementary school	31	57.4	34	37.4	51	26.0		22	61.1	14	50.0	32	50.8	
	Middle school and more	17	31.5	52	57.1	142	72.5		8	22.2	12	42.9	26	41.3	
Marital stasus	Married	53	98.2	85	93.4	188	96.0	0.297	34	94.4	25	89.3	61	96.8	0.347
	Widowed	1	1.8	1	1.1	4	2.0		2	5.6	3	10.7	2	3.2	
	Single/separated/ divorced	0	-	5	5.5	4	2.0		0	-	0	-	0	-	
Family size	Live alone	1	1.9	2	2.2	10	5.1	0.056	2	5.6	1	3.6	2	3.2	0.326
	Two	34	63.0	43	47.3	120	61.2		23	63.9	13	46.4	43	68.3	
	More than three	19	35.1	46	50.5	66	33.7		11	30.5	14	50.0	18	28.5	
Annual household income, thousand won	Less than 10,000	6	11.1	5	5.5	5	2.6	0.003	5	13.9	2	7.1	3	4.8	0.210
	10,000-29,999	23	42.6	18	19.8	40	20.4		15	41.7	4	14.3	18	28.6	
	30,000-49,999	10	18.5	23	25.3	53	27.0		7	19.4	8	28.6	13	20.6	
	More than 50,000	13	24.1	32	35.2	74	37.8		5	13.9	8	28.6	19	30.1	
	Response refusal	2	3.7	13	14.2	24	12.2		4	11.1	6	21.4	10	15.9	

* In Korea, greenhouse means poly-tunnel structure.
† Calculated by Chi-square test.

수는 시설 오이군이 연간 37.22±27.86회으로 가장 많이 살포를 하는 것으로 나타났고, 과수군은 연간 17.69±7.27회로 상대적으로 살포 횟수가 적게 나타났으며 이는 통계적으로 유의하였다(p<0.001). 조사

Table 2. Agricultural characteristics in chili and cucumber cultivation among greenhouse and orchard farmers

	Men				Women			
	Greenhouse* farmers		Orchard farmers		Greenhouse farmers		Orchard farmers	
	Chili (n=54)	Cucumber or other vegetables (n=91)	Apple or other fruits (n=196)	*p*-value†	Chili (n=36)	Cucumber or other vegetables (n=28)	Apple or other fruits (n=63)	*p*-value
	Mean±Std	Mean±Std	Mean±Std		Mean±Std	Mean±Std	Mean±Std	
Scale of farming (m^2)	8983±10477	9894±10357	16532±11618	<0.001	7765±8436	8916±10268	16224±13011	<0.001
Duration of farming (year)	38.76±14.19	31.69±14.56	35.77±15.19	0.016	32.97±14.11	28.07±12.77	35.90±10.75	0.021
Duration of pesticide use (year)	35.39±12.62	29.64±13.02	35.23±14.13	0.004	29.39±13.84	24.57±10.91	33.44±10.69	0.004
Annual frequency of spraying	25.98±18.88	37.22±37.86	17.69±7.27	<0.001	30.69±25.95	27.00±23.22	16.25±5.01	<0.001
Interval period of between survey and the last spraying (day)	14.70±26.73	35.95±48.71	4.67±3.16	<0.001	14.50±21.15	66.86±62.13	6.13±4.50	<0.001
No. of protective equipment	2.19±1.95	1.60±1.68	3.95±2.18	<0.001	1.75±1.76	1.14±1.48	3.05±2.34	<0.001

Abbreviation: Std=Standard Deviation.
* In Korea, greenhouse means poly-tunnel structure.
† Calculated by ANOVA.

날짜를 기준으로 가장 최근에 농약을 살포한 날짜와의 간격(일)은 시설 오이군이 35.95±48.71일로 간격이 가장 넓었는데, 이는 오이군의 조사시기가 12월에 이루어져 상대적으로 농약을 적게 치는 겨울 기간 조사의 영향으로 추측된다(p=0.001). 농약 살포 시의 보호구 착용 개수는 과수군이 평균 3.95±2.18개로, 두 시설군과 비교해 상대적으로 많은 보호구를 착용하고 있는 것으로 나타났다(p<0.001). 여자 농업인의 농작업 특성도 남자 농업인과 유사한 결과를 보였다.

3. 소변의 농약 대사체의 검출률과 농도 분포

소변의 농약 대사체의 검출률과 농도의 분포는 Table 3과 4에 제시하였다. 유기인계 농약 대사체 지표의 남자 농업인의 검출률(>LOQ 또는 LOD)는 DETP를 제외한 지표 3종이 시설 고추군과 오이군이 과수군에 비해 높은 수준이었으며, 지표 4종을 합산한 ∑DAP의 검출률도 시설 고추군이 66.7%, 하우수 오이군이 63.7%로 비슷하였고 과수군은 29.6%로 나타나 시설 두 군에 비해 현저히 낮은 검출률을 나타냈다(p<0.001). DMTP의 경우 시설 고추군과 오이군이 검출률 각 51.9%와 51.7%로 비슷한 수준이었지만, 농도에서는 시설 오이군이 159.94±256.01 μg/g crea., 시설 고추군이 87.57±171.46 μg/g crea.으로 시설 오이군이 매우 높은 수준이었으나(p<0.001), 중앙값은 각 7.29과 7.18 μg/g crea.으로 비슷하였다. 이와 같은 경향은 ∑DAP의 검출률과 농도 분포에서도 비슷하게 나타났다. 여자 농업인의 유기인계 지표의 검출률은 전체적으로 남자 농업인보다 약간 낮은 수준이었다. DMP의 검출률은 하우스 고추군과 오이군이 각 33.3%, 42.9%, 과수군이 9.5%로 시설 오이군의 검출률이 가장 높았는데, 농

Table 3. Distribution of urinary concentration of organophosphates and pyrethroids metabolite in chili and cucumber cultivation among greenhouse and orchard farmers in men

Metabolites	Groups	Crops	LOQ/ LOD	Detection			Urinary concentration of organophosphates and pyrethroids metabolite									
				n	%	*p*-value[†, ‡]	Mean ± Std			Geo Mean	Selected percentiles						*p*-value[§, ‖]
											Min	25th	50th	75th	95th	Max	
DMP (μg/g crea.)	Greenhouse[*] farmers	Chili (n=54)	0.1	26	48.2	<0.001	18.43	±	43.76	NC	<LOQ	0.05	0.13	16.05	84.77	267.69	0.068
		Cucumber or other vegetables (n=91)	0.1	47	51.7		25.96	±	47.35	NC	<LOQ	0.06	3.44	34.93	96.82	273.07	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	0.01	23	11.7		7.78	±	73.29	NC	<LOD	0.01	0.01	0.03	10.65	1003.96	
DMTP (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=54)	1	28	51.9	<0.001	87.57	±	171.46	NC	<LOQ	0.55	7.29	72.73	592.46	806.07	<0.001
		Cucumber or other vegetables (n=91)	1	47	51.7		159.94	±	256.01	NC	<LOQ	0.60	7.18	257.01	775.71	982.12	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	0.005	27	13.8		6.49	±	35.09	NC	<LOD	0.00	0.01	0.02	32.06	407.03	
DEP (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=54)	0.1	14	25.9	0.033	1.32	±	4.21	NC	<LOQ	0.05	0.08	0.22	13.52	24.02	0.391
		Cucumber or other vegetables (n=91)	0.1	23	25.3		2.63	±	7.23	NC	<LOQ	0.04	0.07	0.23	21.06	44.20	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	0.01	28	14.3		4.12	±	18.06	NC	<LOD	0.01	0.01	0.03	15.72	147.83	
DETP (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=54)	1	9	16.7	0.801	4.06	±	9.47	NC	<LOQ	0.42	0.72	0.90	33.84	40.48	0.108
		Cucumber or other vegetables (n=91)	1	19	20.9		16.26	±	56.01	NC	<LOQ	0.44	0.65	1.60	90.06	408.45	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	0.01	36	18.4		8.35	±	28.98	NC	<LOD	0.01	0.01	0.04	51.51	268.35	
∑DAP (μg/g crea.)[¶]	Greenhouse farmers	Chili (n=54)	-	36	66.7	<0.001	111.39	±	189.57	19.61	<LOQ	1.73	38.07	113.50	670.83	838.04	<0.001
		Cucumber or other vegetables (n=91)	-	58	63.7		204.78	±	292.24	27.44	<LOQ	1.58	41.15	380.32	825.32	1131.34	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	-	58	29.6		26.75	±	95.83	NC	<LOD	0.02	0.05	8.10	178.69	1054.05	
Cis-DCCA (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=54)	1	16	29.6	0.125	7.55	±	25.60	NC	<LOQ	0.42	0.73	1.64	25.20	155.40	<0.001
		Cucumber or other vegetables (n=91)	1	38	41.8		21.32	±	39.34	NC	<LOQ	0.47	0.91	25.48	121.48	181.67	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	0.5	59	30.1		3.69	±	16.69	NC	<LOD	0.40	0.74	2.01	10.14	210.24	

Table 3. Continued

Metabolites	Groups	Crops	LOQ/ LOD	Detection			Urinary concentration of organophosphates and pyrethroids metabolite								
				n	%	*p*-value†, ‡	Mean ± Std	Geo Mean	Selected percentiles						*p*-value§, ‖
									Min	25th	50th	75th	95th	Max	
Trans-DCCA (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=54)	1	13	24.1	<0.001	1.33 ± 2.18	NC	<LOQ	0.37	0.63	1.09	8.69	10.13	0.206
		Cucumber or other vegetables (n=91)	1	36	39.6		6.77 ± 19.61	NC	<LOQ	0.47	0.80	7.57	28.51	175.59	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	0.5	102	52.0		4.29 ± 19.43	NC	<LOD	0.60	1.20	2.55	12.90	258.55	
3-PBA (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=54)	0.5	40	74.1	0.132	2.70 ± 4.75	1.27	<LOQ	0.57	1.35	2.54	16.49	26.10	0.001
		Cucumber or other vegetables (n=91)	0.5	66	72.5		3.82 ± 11.37	1.16	<LOQ	0.39	1.02	2.43	10.00	97.51	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	0.3	161	82.1		13.20 ± 30.41	4.11	<LOD	1.72	4.71	9.97	56.47	345.89	
DBCA (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=54)	1	11	20.4	<0.001	1.76 ± 4.67	NC	<LOQ	0.39	0.72	1.09	5.91	33.37	0.003
		Cucumber or other vegetables (n=91)	1	17	18.7		2.85 ± 6.92	NC	<LOQ	0.42	0.61	1.52	14.83	40.80	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	0.5	12	6.1		1.01 ± 1.71	NC	<LOD	0.28	0.51	1.11	3.40	16.46	
∑PY (μg/g crea.)¶	Greenhouse farmers	Chili (n=54)	-	49	90.7	0.306	13.35 ± 31.15	5.89	<LOQ	3.23	4.52	12.03	30.11	199.45	0.068
		Cucumber or other vegetables (n=91)	-	77	84.6		34.76 ± 51.86	12.26	<LOQ	3.27	9.20	44.26	166.64	240.67	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)	-	161	82.1	?	22.18 ± 63.59	8.94	<LOD	4.10	8.80	17.94	70.76	814.96	

Abbreviation: LOQ=Limit of Quantification, LOD=Limit of Detection, n=number of samples, Std=Standard deviation, GeoMean=Geometric Mean, NC=Not Calculated, because the proportion of detectable sample was less than 60% of the samples., crea.=creatinine, DMP=dimethylphosphate, DMTP=dimethylthiophosphate, DEP=diethylphosphate, DETP=diethylthiophosphate, DCCA=Cis/Trans-3-(2-2dichlorovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid, 3-PBA=3-phenoxybenzoic acid, DBCA=Cis-3-(2-2dibrmovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid, ∑DAP=summation of DMP, DMTP, DEP, and DETP, ∑PY=summation of Cis and Trans-DCCA, 3-PBA, and DBCA.

* In Korea, greenhouse means poly-tunnel structure.

† Calculated by chi-square test.

‡ Comparison by survey period.

§ Calculated by ANOVA

‖ Comparison by type of crops.

¶ ∑DAP and ∑PY LOD or LOQ value divided by square root of 2, each summation of LOD or LOQ (mg/g creatinine).

Table 4. Distribution of urinary concentration of organophosphates and pyrethroids metabolite in chili and cucumber cultivation among greenhouse and orchard farmers in women

Compounds	Groups	Survey period	LOQ/ LOD	Detection			Urinary concentration of organophosphates and pyrethroids metabolite									
				n	%	*p*-value†,‡	Mean ± Std	Geo Mean	Selected percentiles						*p*-value§,‖
									Min	25th	50th	75th	95th	Max	
DMP (μg/g crea.)	Greenhouse* farmers	Chili (n=36)	0.1	12	33.3	<0.001	5.09 ± 10.86	NC	<LOQ	0.06	0.10	4.45	36.88	48.71	0.024
		Cucumber or other vegetables (n=28)	0.1	12	42.9		26.13 ± 54.91	NC	<LOQ	0.09	0.15	29.79	180.89	222.29	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	0.01	6	9.5		5.58 ± 32.33	NC	<LOD	0.01	0.02	0.04	14.17	250.81	
DMTP (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=36)	1	15	41.7	0.002	65.56 ± 142.67	NC	<LOQ	0.58	1.40	43.08	364.58	718.14	0.011
		Cucumber or other vegetables (n=28)	1	11	39.3		67.28 ± 169.15	NC	<LOQ	0.83	1.43	35.63	484.33	754.17	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	0.005	8	12.7		6.15 ± 26.33	NC	<LOD	0.00	0.01	0.02	38.99	181.06	
DEP (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=36)	0.1	13	36.1	0.003	1.75 ± 3.69	NC	<LOQ	0.06	0.13	1.18	13.85	14.84	0.561
		Cucumber or other vegetables (n=28)	0.1	2	7.1		0.24 ± 0.54	NC	<LOQ	0.05	0.08	0.13	1.57	2.56	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	0.01	8	12.7		1.40 ± 7.73	NC	<LOD	0.01	0.03	0.05	1.62	59.45	
DETP (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=36)	1	10	27.8	0.009	10.37 ± 27.75	NC	<LOQ	0.53	0.98	5.58	54.41	153.97	0.189
		Cucumber or other vegetables (n=28)	1	0	-										
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	0.01	16	25.4		22.38 ± 72.67	NC	<LOD	0.01	0.03	1.20	162.31	422.90	
∑DAP (μg/g crea.)¶	Greenhouse farmers	Chili (n=36)	-	23	63.9	0.007	82.76 ± 159.85	15.03	<LOQ	2.15	19.44	64.09	576.39	741.11	0.129
		Cucumber or other vegetables (n=28)	-	14	50.0		94.60 ± 210.95	NC	<LOQ	2.16	4.10	70.81	494.21	976.93	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	-	20	31.8		35.52 ± 95.58	NC	<LOD	0.05	0.13	7.27	221.87	475.34	
Cis-DCCA (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=36)	1	10	27.8	0.801	4.32 ± 10.91	NC	<LOQ	0.63	1.03	2.81	33.49	58.93	0.093
		Cucumber or other vegetables (n=28)	1	9	32.1		9.42 ± 22.32	NC	<LOQ	0.67	1.12	7.39	83.62	89.42	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	0.5	16	25.4		3.32 ± 4.78	NC	<LOD	0.82	1.49	3.37	12.89	25.45	

Table 4. Continued

Compounds	Groups	Survey period	LOQ/ LOD	Detection			Urinary concentration of organophosphates and pyrethroids metabolite									
				n	%	*p*-value†,‡	Mean ± Std	Geo Mean	Selected percentiles						*p*-value§,‖
									Min	25th	50th	75th	95th	Max	
Trans-DCCA (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=36)	1	9	25.0	0.011	2.05 ± 3.08	NC	<LOQ	0.61	0.94	1.84	13.01	13.22	0.149
		Cucumber or other vegetables (n=28)	1	8	28.6		5.49 ± 13.26	NC	<LOQ	0.54	0.99	2.02	37.90	60.91	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	0.5	33	52.4		4.36 ± 5.00	NC	<LOD	1.22	2.02	4.85	15.51	21.51	
3-PBA (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=36)	0.5	29	80.6	0.064	3.51 ± 3.79	2.01	<LOQ	1.14	2.33	4.78	11.87	18.75	<0.001
		Cucumber or other vegetables (n=28)	0.5	18	64.3		2.04 ± 2.60	1.06	<LOQ	0.30	1.10	3.13	6.37	12.16	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	0.3	54	85.7		17.58 ± 24.70	7.10	<LOD	3.03	7.76	20.02	78.05	102.56	
DBCA (μg/g crea.)	Greenhouse farmers	Chili (n=36)	1	8	22.2	0.027	2.43 ± 3.22	NC	<LOQ	0.58	1.00	2.37	11.02	12.59	0.144
		Cucumber or other vegetables (n=28)	1	5	17.9		5.18 ± 17.01	NC	<LOQ	0.50	0.96	1.54	19.21	89.79	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	0.5	3	4.8		1.50 ± 1.34	NC	<LOD	0.49	1.12	1.95	4.57	6.92	
∑PY (μg/g crea.)¶	Greenhouse farmers	Chili (n=36)	-	34	94.4	0.086	12.31 ± 15.10	8.47	<LOQ	5.44	8.78	13.54	49.20	85.29	0.092
		Cucumber or other vegetables (n=28)	-	21	75.0		22.13 ± 44.97	8.00	<LOQ	3.85	6.51	15.26	156.91	192.16	
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)	-	54	85.7		26.76 ± 30.95	15.00	<LOD	6.95	14.21	34.66	79.70	147.38	

Abbreviation: LOQ=Limit of Quantification, LOD=Limit of Detection, n=number of samples, Std=Standard deviation, GeoMean=Geometric Mean, NC=Not Calculated, because the proportion of detectable sample was less than 60% of the samples., crea.=creatinine, DMP=dimethylphosphate, DMTP=dimethylthiophosphate, DEP=diethylphosphate, DETP=diethylthiophosphate, DCCA=Cis/Trans-3-(2-2dichlorovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid, 3-PBA=3-phenoxybenzoic acid, DBCA=Cis-3-(2-2dibrmovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid, ∑DAP=summation of DMP, DMTP, DEP, and DETP, ∑PY=summation of Cis and Trans-DCCA, 3-PBA, and DBCA.

* In Korea, greenhouse means poly-tunnel structure.

† Calculated by chi-square test.

‡ Comparison by survey period.

§ Calculated by ANOVA

‖ Comparison by type of crops.

¶ ∑DAP and ∑PY LOD or LOQ value divided by square root of 2, each summation of LOD or LOQ (mg/g creatinine).

도에서도 시설 오이군이 가장 높았다(p=0.024). DMTP의 검출률은 시설 두 군이 각 41.7%와 39.3%로 비슷한 수준이었고, 검출농도 분포도 각 63.56±142.67 μg/g crea., 67.28±169.15 μg/g crea.로 비슷하였다. ∑DAP의 검출률은 시설 고추군이 63.9%로 가장 높았고 과수군이 31.8%로 가장 낮았다(p=0.007). 검출농도의 평균은 차이가 없었다(p=0.129).

피레스로이드계 농약 대사체 지표의 남자 농업인의 검출률을 보면, Cis-DCCA의 경우 세 개 군 간 통계적 차이는 없었으나(p=0.125), 시설 오이군에서 Cis-DCCA의 검출농도가 21.32±39.34 μg/g crea.로 다른 두 군에 비해 유의하게 높았다(p<0.001). Trans-DCCA의 경우 과수군의 검출률이 52.0%로 높게 나타났으나(p<0.001), 검출농도에서는 유의한 차이를 보이지 않았다(p=0.206). 3-PBA의 경우 세 군의 검출률은 차이가 없었으나, 과수군의 검출농도가 13.20±30.41 μg/g crea.로 시설 두 군에 비해 매우 높은 수준의 농도가 검출되었다(p=0.001). DBCA는 시설 고추군과 오이군이 각 20.4%, 18.7%의 검출률을 나타내 과수군의 6.1% 보다 높았으며(p<0.001), 검출농도도 통계적으로 유의하게 차이가 있었다(p=0.003). 여자 농업인도 남자 농업인과 비슷한 경향을 보였는데, Trans-DCCA의 경우 검출률에서는 과수군의 검출률이 52.4%로 상대적으로 매우 높았으나(p=0.011), 검출농도는 차이가 없었다(p=0.149). 3-PBA도 시설 고추군과 과수군이 시설 오이군에 비해 검출률이 높았으나 통계적 차이는 없었고(p=0.064), 검출농도는 과수군이 평균 17.58±24.70 μg/g crea.로 시설 두 군에 비해 매우 높았다(p<0.001). DBCA는 시설 고추군과 오이군이 과수군에 비해 상대적으로 검출이 많이 되었으나(p=0.027), 검출농도는 군 간 차이가 없었다(p=0.144).

4. 농약 대사체와 농작업 변수의 상관성

각 군별로 농약 대사체(∑DAP와 ∑PY)과 농작업 변수의 상관성을 분석한 결과는 Table 5에 제시하였다. 시설 고추군과 과수군의 ∑DAP와 ∑PY 사이의 유의한 상관성은 남자와 여자 농업인에서 모두 나타나지 않았으나, 남자 농업인의 시설 오이군에서는 상관계수가 0.408로 매우 높은 상관성을 보였다(p<0.001). 그러나 여자 농업인에서는 유의하지 않았다. 또한 남자 농업인의 시설 오이군에서는 재배 면적이 증가할수록 ∑DAP이 증가하는 양의 상관성을 보였으며, 과수군에서는 가장 최근에 농약을 살포한 날짜와의 간격(일)과 보호구 착용 개수의 ∑PY와의 상관성이 각각 -0.183과 -0.148로 음의 상관성을 보였으며 이는 통계적으로 유의하였다(두 개 변수 모두 p <0.05). 그러나 같은 남자 과수군에서 ∑DAP와 보호구 착용 개수와의 상관성이 양의 상관성을 보여(Spearman's rho=0.149, p<0.05), ∑PY의 결과와 상반되었다.

5. 농약 대사체와 농작업 변수의 연관성

농약 대사체와 연관성을 보이는 농작업 변수를 살펴보기 위해 다변량 선형 회귀분석을 실시하였다(Table 6). ∑DAP에 대한 모델 설명력(R^2)은 남자 농업인에서 0.339, 여자 농업인은 0.179로 나타났으며, ∑PY에 대한 모델 설명력은 남자 농업인에서 0.060, 여자 농업인에서 0.117로 나타나 ∑DAP에 비해 상대적으로 낮은 수준이었다. 독립변수 별로 보면 과수군에 비해 시설 고추군과 오이군은 ∑DAP가 증가하는 경향으로 나타났고 통계적으로 매우 유의하였으며(각 p<0.001, p<0.001), 여자 농업인에서도 같은 과수군에 비해 시설 고추군과 오이군이 ∑DAP가 증가하는 경향을 보였으며 이는 통계적으로 유의하였다(각 p<0.001, p=0.003). ∑PY가 여자 농업인에서 과수군에 비해 시설 고추군과 오이군은 통계적으로 유의하게 감소하는 경향을 보였지만 유의하지는 않았다. 남자 농업인에서 조사시기에 따라 ∑DAP 의 노출량이 매우 유의하게 감소하는 경향을 보여 계절에 따른 변이가 있었으나(p<0.001), 여자 농업인에서는 차이가 없었다. 반면 ∑PY는 계절에 따른 변화가 유의하지 않았다.

IV. 고 찰

2014년부터 2015년까지 농업인을 대상으로 유기인계와 피레스로이드계 대사체의 측정과 농작업 관련 역학자료를 수집하여, 생체지표의 검출 및 농도에 영향을 주는 농작업 관련 요인을 분석하였다. 농업인을 주요 재배하는 농작물을 기준으로 시설 고추군과 오이군, 과수군으로 나누어 생체지표의 살펴본 결과, 재배 작물에 따라 유기인계와 피레스로이드계 농약 대사체의 검출률과 농도의 분포가 다른 것을

Table 5. Spearman's rank correlation coefficients of sum of urinary metabolites of pesticide after log-transformation and each agricultural characteristics in chili and cucumber cultivation among greenhouse and orchard farmers

Groups		Crops	∑DAP		∑PY	
			rho	*p*-value	*rho*	*p*-value
Men	Greenhouse* farmers	Chili (n=54)				
		∑DAP (μg/g crea)	1.000			
		∑PY (μg/g crea)	0.024	0.866	1.000	
		Scale of farming (m^2)	-0.049	0.725	-0.189	0.176
		Duration of farming (year)	-0.104	0.460	0.106	0.450
		Duration of pesticide use (year)	-0.282	0.040	0.081	0.562
		Annual frequency of spraying	0.086	0.542	-0.122	0.385
		Interval period of between survey and the last spraying (day)	-0.065	0.643	0.007	0.958
		No. of Protective equipment	0.016	0.909	0.019	0.892
		Cucumber or other vegetables (n=91)				
		∑DAP (μg/g crea)	1.000			
		∑PY (μg/g crea)	0.408	<0.001	1.000	
		Scale of farming (m^2)	0.211	0.046	0.207	0.051
		Duration of farming (year)	-0.093	0.384	-0.119	0.265
		Duration of pesticide use (year)	-0.190	0.072	-0.050	0.643
		Annual frequency of spraying	0.175	0.100	-0.080	0.455
		Interval period of between survey andthelastspraying(day)	-0.169	0.111	-0.092	0.389
		No. of Protective equipment	-0.026	0.808	-0.071	0.506
	Orchard farmers	Apple or other fruits (n=196)				
		∑DAP (μg/g crea)	1.000			
		∑PY (μg/g crea)	0.026	0.715	1.000	
		Scale of farming (m^2)	0.104	0.158	0.022	0.763
		Duration of farming (year)	-0.007	0.928	0.133	0.063
		Duration of pesticide use (year)	-0.006	0.939	0.086	0.234
		Annual frequency of spraying	0.001	0.990	0.033	0.645
		Interval period of between survey and the last spraying (day)	0.071	0.321	-0.183	0.010
		No. of Protective equipment	0.149	0.038	-0.148	0.039
Women	Greenhouse farmers	Chili (n=36)				
		∑DAP (μg/g crea)	1.000			
		∑PY (μg/g crea)	-0.122	0.485	1.000	
		Scale of farming (m^2)	-0.267	0.137	0.400	0.017
		Duration of farming (year)	0.122	0.486	0.254	0.141
		Duration of pesticide use (year)	0.167	0.336	0.215	0.214
		Annual frequency of spraying	0.099	0.570	-0.328	0.055
		Interval period of between survey and the last spraying (day)	-0.022	0.898	-0.019	0.916
		No. of Protective equipment	-0.099	0.572	0.139	0.426

Table 5. Continued

Groups	Crops	∑DAP		∑PY	
		rho	*p*-value	*rho*	*p*-value
	Cucumber or other vegetables (n=28)				
	∑DAP (μg/g crea)	1.000			
	∑PY (μg/g crea)	0.355	0.069	1.000	
	Scale of farming (m^2)	0.309	0.117	-0.141	0.483
	Duration of farming (year)	-0.123	0.542	-0.314	0.110
	Duration of pesticide use (year)	0.074	0.714	-0.147	0.464
	Annual frequency of spraying	0.079	0.694	-0.174	0.385
	Interval period of between survey and the last spraying (day)	-0.045	0.822	0.060	0.767
	No. of Protective equipment	0.034	0.865	-0.145	0.471
Orchard farmers	Apple or other fruits (n=63)				
	∑DAP (μg/g crea)	1.000			
	∑PY (μg/g crea)	0.103	0.427	1.000	
	Scale of farming (m^2)	-0.028	0.827	-0.062	0.635
	Duration of farming (year)	0.006	0.965	0.066	0.612
	Duration of pesticide use (year)	-0.015	0.907	0.019	0.882
	Annual frequency of spraying	-0.024	0.850	0.087	0.502
	Interval period of between survey and the last spraying (day)	0.061	0.638	-0.018	0.889
	No. of Protective equipment	0.059	0.650	-0.032	0.803

Abbreviation: DMP=dimethylphosphate, DMTP=dimethylthiophosphate, DEP=diethylphosphate, DETP=diethylthiophosphate, DCCA=Cis/Trans-3-(2-2dichlorovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid, 3-PBA=3-phenoxybenzoic acid, DBCA=Cis-3-(2-2dibrmovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid, ∑DAP=summation of DMP, DMTP, DEP, and DETP, ∑PY=summation of Cis and Trans-DCCA, 3-PBA, and DBCA.
Allanalysiswereafteradjustedforage.
* In Korea, greenhouse means poly-tunnel structure.

확인할 수 있었다. 시설 고추군과 오이군의 경우 남성 농업인을 기준으로 유기인계 대사체의 검출률과 농도가 과수군에 비해 상대적으로 높게 나타났으며, 피레스로이드계의 경우 대사체 종류에 따라 검출농도가 군별로 다른 양상을 보였다. 유기인계와 피레스로이드계 농약 대사체에 영향을 주는 가장 주요한 요인은 주요 재배 작물과 조사시기(계절)인 것으로 나타났으며, 피레스로이드계 농약 대사체는 농작업 요인과 뚜렷한 연관성을 보이지 않았다.

본 연구결과에서 남자와 여자 농업인 모두 DMP와 DMTP 검출량이 시설재배군에서 과수군에 비해 매우 높게 나타났다. 검출률로 보면 미국의 남자 농업인에 비해 낮은 수준이었으며, 미국의 농업인에서는 DMP의 노출량이 많았는데,[14] 본 연구의 시설재배 농업인에서는 DMTP의 노출량이 높게 나타나 다른 양상을 보였다. 남자 농업인을 기준으로 유기인계 살충제의 노출이 시설재배 두 개 군에서 더 높게 나타났는데, 이러한 차이에 영향을 미치는 것은 작물의 재배 종류, 개인의 보호구 착용 정도, 안전수칙 준수 여부, 사용 농약 원제의 차이 등 여러 가지 이유가 있을 수 있다. 재배면적은 과수 재배군의 작목 규모가 컸지만, 연간 농약 살포회수는 시설 재배군이 더 많았고 개인 보호구 착용개수가 더 적었다. 유기인계 살충제는 우리나라 농업 현장에서 많이 사용되는 농약으로써, 2007-2011년의 우리나라 상위 50위 농약 중 15종이 유기인계로 집계되었다.[5] 이들 상위 소비 유기인계 살충제 중 DMP, DMTP, DEP, DETP로 대사되는 것은 dichlorvos (DMP로 대사, 이하 대사 생략), fenitrothion (DMP, DMTP), terbufos (DEP, DETP), phorate (DEP, DETP),

Table 6. Relationship between sum of urinary metabolites of pesticide after log-transformation and each agricultural characteristics

		∑DAP					∑PY				
	Agricultural characteristics	R^2	Unstandardized β	SE	Standardized β	*p*-value	R^2	Unstandardized β	SE	Standardized β	*p*-value
Men (n=341)	Chili grower of greenhouse* farmers vs. apple or other fruits of orchard farmers	0.339	4.020	0.446	0.642	<0.001	0.060	-0.342	0.269	-0.108	0.205
	Cucumber or other vegetables grower of greenhouse farmers vs. apple or other fruits of Orchard farmers		5.281	0.565	1.022	<0.001		0.473	0.341	0.181	0.167
	Age (years)		0.009	0.012	0.036	0.482		0.003	0.007	0.026	0.671
	Scale of farming (m^2) after log-transformation		0.246	0.138	0.093	0.076		0.010	0.083	0.007	0.909
	Annual frequency of spraying after log-transformation		0.242	0.186	0.064	0.194		-0.050	0.112	-0.026	0.658
	Interval period of between survey and the last spraying (day) after log-transformation		0.028	0.114	0.014	0.804		-0.140	0.069	-0.136	0.043
	No. of protective equipment		0.061	0.051	0.060	0.239		-0.049	0.031	-0.096	0.119
	Survey period		-0.705	0.132	-0.571	<0.001		-0.020	0.080	-0.032	0.801
Women (n=147)	Chili grower of greenhouse farmers vs. apple or other fruits of orchard farmers	0.179	2.523	0.656	0.554	<0.001	0.117	-0.127	0.332	-0.057	0.703
	Cucumber or other vegetables grower of greenhouse farmers vs. apple or other fruits of Orchard farmers		2.928	0.949	0.591	0.003		-0.062	0.481	-0.026	0.898
	Age (years)		0.015	0.025	0.061	0.550		-0.016	0.012	-0.138	0.195
	Scale of farming (m^2) after log-transformation		0.025	0.204	0.012	0.904		-0.055	0.103	-0.055	0.596
	Annual frequency of spraying after log-transformation		0.251	0.239	0.091	0.294		0.154	0.121	-0.115	0.205
	Interval period of between survey and the last spraying (day) after log-transformation		0.043	0.202	0.025	0.831		0.114	0.102	0.136	0.266
	No. of protective equipment		0.039	0.087	0.041	0.655		-0.024	0.044	-0.052	0.582
	Survey period		-0.383	0.251	-0.320	0.130		-0.246	0.127	-0.420	0.056

Abbreviation: DMP=dimethylphosphate, DMTP=dimethylthiophosphate, DEP=diethylphosphate, DETP=diethylthiophosphate, DCCA=Cis/Trans-3-(2-2dichlorovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid, 3-PBA=3-phenoxybenzoic acid, DBCA=Cis-3-(2-2dibrmovinyl)-2, 2-dimethylcyclopropane carboxylic acid, ∑DAP=summation of DMP, DMTP, DEP, and DETP, ∑PY=summation of Cis and Trans-DCCA, 3-PBA, and DBCA, SE=standard error.
Analyzed by multiple linear regression model.
* In Korea, greenhouse means poly-tunnel structure.

methidathion (DMP, DMTP), diazinon (DEP, DETP), chloropyrifos (DEP, DETP), trichlorfon (DMP)등 8종이었다.[15] 이들 개별 유기인계 농약 중 몇 가지는 암과 역학적 연관성이 보고된 바 있으며, 특히 IARC의 발암성 분류에서 diazinon과 dichlorovos는 각각 인체 발암성이 추정된 경우(Group 2A: probably carcinogenic to humans)와 인체 발암성이 가능한 경우(Group 2B: possibly carinogenic to humans)로 평가되어,[16] 향후 농약 정책 및 농업인 건강정책 수립 시 규제를 고려할 필요가 있는 원제들이다.

피레스로이드계 물질은 가정용 살충제에 많이 포함되는 성분이기 때문에 일반 인구집단에서 광범위하게 노출될 수 있어, 피레스로이드계의 대표적 노출지표인 3-PBA를 우리나라를 포함한 미국과 독일 등에서 일반 인구집단의 노출수준을 모니터링 하고 있다.[4,17-20] 피레스로이드계 원제 중 cypermethrin, deltamethrin, permethrin은 3-PBA, Cis와 Trans-DCCA 등 대사체 3종으로 대사되며, 이 중 deltamethrin은 DBCA로도 대사되어 4가지 종류의 대사체 모두 해당되고, cyfluthrin, cyhalothrin, etofenprox, esfenvalerate, fenpropathrin은 3-PBA 한 종류로만 대사된다.[21] 그러나 피레스로이드계 농약은 유기인계 살충제와 비교하여 우리나라의 전체 농약 사용량 상위 50위 중 etofenprox 한 종만이 포함되어 있을 뿐,[5] 모든 작물에 광범위하게 사용되기보다 과수 등의 일부 작물에서 선택적으로 쓰이는 것으로 추측된다. 본 연구에서 피레스로이드계 대사체 4종의 합인 ∑PY의 노출 평균은 세 군 간 차이는 없었으나, 남자 농업인 기준 시설 오이군에서 Cis-DCCA와 DBCA의 검출 농도가 다른 군에 비해 유의하게 높았으며, 과수군에서 3-PBA의 평균이 매우 높게 나타나는 등 작목의 종류에 따라 노출 양상이 달라질 수 있음을 뒷받침한다.

시설 고추군과 오이군의 Cis-DCCA와 DBCA의 검출률과 검출농도가 과수군에 비해 확연하게 높았는데, 이들 대사체는 permethrin, cypermethrin, deltamethrin 등의 3종과 관련이 있어, 시설 작목에서 상기의 원제가 함유되어 있는 농약을 다량 사용하는 것으로 추측할 수 있다. 피레스로이드계 농약 노출 시 나타날 수 있는 건강영향으로 내분비계의 이상을 초래하는 것인데, cypermethrin은 남자에서 정자의 염색체 수 이상과 DNA 절단을 증가시키고, deltamethrin과 permethrin은 여자에서 자녀의 신경발달과 행동장애를 유발하고 백혈병 증가와 연관성이 있는 것으로 보고되었다.[19]

반면 과수군에서는 3-PBA 수준이 남자와 여자 농업인 모두에서 시설군에 비해 통계적으로 매우 유의하게 높은 수준으로 나왔는데, 남자 농업인 기준 과수군에서 3-PBA가 기하평균 4.11 μg/g crea.으로 가장 높았다. 우리나라 일반 인구집단과 비교했을 때 약 2.7배, 60대와 비교했을 때는 약 1.3배 높은 수준이었으며,[20] 국외의 농업인과 비교했을 때도 미국의 남성 농업인에 비해 약 1.8배,[22] 일본의 남성 농업인에 비해서는 약 10.3배 노출이 높은 수준으로,[23] 과수군의 3-PBA 노출이 매우 높은 수준임을 알 수 있었다. 그렇다면 왜 과수군에서 특히 3-PBA의 수준이 높게 나타났는지는 사용 농약의 실태와 연계하여 해석할 필요가 있다. 국내의 사과 재배농가의 농약사용 실태연구에 따르면, 사과 재배농가에서 혼합살충제 성분 중 etofenprox가 가장 많이 사용되는 원제성분으로 조사가 되었으며,[24] 체내 흡수 시 3-PBA로 대사되어 배출되는 성분이다. 이를 근거로 본 연구의 과수군 대상자에서도 etofenprox 성분의 살충제를 많이 사용했을 것이라고 추측할 수 있다. Etofenprox는 permethrin, cypermethrin, deltamethrin 등에 비해 인체독성영향이 상대적으로 적은 물질이다. 이렇듯 개별 물질의 인체유해 가능성은 다를 수 있기 때문에 3-PBA 한 종류로 노출을 측정하는 것보다 특정 원제에 민감한 대사지표인 DCCA, DBCA 등을 같이 조사하는 것이 다양한 정보를 제공해 줄 수 있을 것이다.

농약 대사체 농도와 농작업 변수의 연관성을 보기 위한 선형회귀분석을 시행한 결과에서 유기인계와 피레스로이드계 대사체 농도를 설명하는 농작업 요인의 설명력이 다르게 나타났다. 남자 농업인 기준, 유기인계 대사체 합은 모델의 설명력(R^2)가 33.9%로 높았던 반면, 피레스로이드계 대사체 합의 설명력은 6.0%로 매우 낮았다. 향후 추가 연구에서 각 대사체를 고려할 수 있는 모형으로 추가 분석이 필요하겠으나, 개인에서 대사체가 각각 존재하는 것이 아니라 인체 내에서 다양한 대사체가 같이 존재하므로 대사체 사이의 개인 내 변이와 개인 간 변이를 모두 고려할 수 있는 정교한 모델이 필요할 것으로 생

각된다.

유기인계 대사체에 영향을 주는 농작업 요인으로 조사시기(계절)인 것으로 나타났는데, 피레스로이드계 농약 대사체는 농작업 요인과 뚜렷한 연관성을 보이지 않았다. 조사시기(계절)와 조사일로부터 가장 최근 농약살포를 한 날과의 간격(일)은 남자 농업인 기준 상관성이 0.373($p<0.001$)로 높았는데(data not shown), 겨울에 상대적으로 농약 살포횟수가 적어지고 살포의 간격이 넓어지기 때문이다. 이 연구의 결과는 같은 작목 안에서 계절적 요인을 비교한 것이 아니지만, 시설 오이군을 조사시기로 나누어 비교했을 때도 비슷한 양상을 나타냈다(data not shown). 시설 오이군 중 9월 조사가 42.9%, 12월 조사가 57.1%였는데, 두 조사시기로 나누어 비교했을 때 차이를 보였던 대사체는 DMTP 한 종이었으며($p=0.0013$), 피레스로이드계는 차이가 없었다(data not shown). 조사일로부터 가장 최근 농약 살포를 한 날 과의 간격은 생물학적 반감기와도 연계하여 해석할 수 있는데, 잔류성이 강한 유기염소계 농약들과 달리 유기인계와 피레스로이드계 살충제는 잔류성이 낮다. 사람에게 diazinon을 경구 투여와 피부노출을 하여 반감기 를 측정한 결과, 각각 2.13시간과 9.12시간으로 관찰되었으며,[25] 피레스로이드계 살충제에 중독 증세를 보이는 농업인에서 대사체를 측정한 결과 반감기는 1.8일, 모두 배설하는데는 약 4일이 걸렸다.[26] 이와 같이 유기인계와 피레스로이드계 살충제의 생물학적 반감기는 2-4일 정도로 매우 짧은 것을 알 수 있으나, 농업인의 경우 1회성 노출이 아니라 직업적으로 저농도 및 장기간 노출되는 만큼 노출 횟수와 기간, 강도 등의 다양한 농작업 요인을 모두 고려하여 해석할 필요가 있다.

이 연구는 해석에 몇 가지 제한점을 가지고 있다. 첫째, 농약노출의 생체지표로써 농약의 대사체를 분석하기 위해서 가장 이상적인 방법은 농약살포 후 다음날의 24시간 소변을 채취하여 분석하는 것이지만, 단면조사 디자인의 역학조사 방법으로 조사가 이뤄졌기 때문에 소변을 단회뇨로 대체할 수 밖에 없었다. 또한 모든 대상자가 조사에 참여한 시점 기준으로 농약 방제작업 후가 될 수 없었기 때문에 조사일로부터 가장 최근의 농약 살포와의 기간이 대상자마다 상이할 수 밖에 없다. 이 부분은 변수를 분석모델에 포함하여 효과를 보정하고자 하였다. 둘째, 소변 대사체 분석 시 적용한 분석방법은 같았으나 2014년과 2015년 사이에 분석기기가 교체됨에 따라 시기에 따라 시료 분석결과에 영향을 미칠 가능성이 있다. 두 기기 사이의 일치도 여부를 확인할 필요가 있으나, 이 자료에서는 고려하지 못 했기 때문에 해석에 주의를 요한다. 셋째, 연구대상자의 조사참여 시기가 작목군마다 다르기 때문에 계절에 따른 변이가 있을 수 있다. 시설 오이군의 경우 군 안에서 조사 시점의 분포가 9월에 51명(42.9%), 12월에 68명(57%)였는데, 유기인계의 경우 계절에 따른 평균의 차이가 나타났으나(∑DAP 기준 $p<0.001$, data not shown), 피레스로이드계는 차이가 없었다 (∑PY 기준, $p=0.408$, data not shown). 이 연구에서는 계절에 따른 변이보다 작목의 종류에 따른 차이가 더 클 것으로 가설을 세웠기 때문에 조사시기에 대한 변수를 공변수로 포함하여 분석하였다. 넷째, 역학조사의 특성 상 대상자의 회상에 의존하는 설문조사 자료를 활용하게 되는데, 이때 회상 오류와 무응답 오류가 발생할 수 있다. 참여 농업인이 자주 사용하는 농약에 관한 상품명 정보는 농약 대사체의 농도와 연결하여 자료를 해석하는데 도움이 될 수 있었으나, 결측률이 높아 활용을 하지 못 했다(살충제 기준 결측률 36.8%). 농약의 대사체는 체내에 들어오는 원제의 종류에 따라 민감하게 반응할 것이므로, 향후 연구에서는 자주 사용하는 농약과 가장 최근에 사용한 농약의 상품명 및 원제 등을 보완할 필요가 있다.

이러한 제한점에도 불구하고, 이 연구는 농업인에서 자세한 농작업 변수를 포함한 역학자료와 농약노출 생체지표의 연관성 분석을 시도한 연구로써 강점을 가진다. 농업인의 생체 농약 노출 수준이 각 작목과 재배 방법에 따라 다를 수 있음을 보여주는 연구로써, 농업인의 농약노출과 건강과의 관련성을 연구하고자 할 때 다양한 생체지표와 농작업 관련 변수를 연계하여 고려할 것을 제안한다.

V. 결 론

이 연구결과는 시설 재배 농업인과 과수 재배 농업인의 농약 노출 양상이 다르게 나타났으며, 이는 어떠한 요인보다 노출에 영향을 주는 요인으로 작물의 재배 유형과 종류가 중요함을 보여주었다. 계절적 요인은 유기인계 대사체와 연관성이 있었지만, 피

레스로이드계 대사체는 연관성이 없었다.

감사의 글

이 연구결과는 농림축산식품부 농업안전보건센터 사업비의 지원을 받았습니다.

References

1. Roberts JR, Reigart JR. Recognition and Management of Pesticide Poisonings [Internet]. 6th ed. Washington, DC: U.S. Environmental Protection Agency; 2013. 212-238.
2. Siemiatycki J, Richardson L, Straif K, Latreille B, Lakhani R, Campbell S, et al. Listing occupational carcinogens. *Environ Health Perspect.* 2004; 112(15): 1447-1459.
3. Alavanja MCR, Bonner MR. Occupational Pesticide Exposures and Cancer Risk: A Review. *J Toxicol Environ Heal Part B.* 2012; 15(4): 238-263.
4. Barr DB, Bravo R, Weerasekera G, Caltabiano LM, Whitehead RD, Olsson A, et al. Concentrations of dialkyl phosphate metabolites of organophosphorus pesticides in the U.S. population. Environ Health Perspect. 2004; 112(2): 186-200.
5. Cha ES, Jeong M, Lee WJ. Agricultural Pesticide Usage and Prioritization in South Korea. Vol. 19, *Journal of Agromedicine.* 2014; 19: 281-293.
6. Lee WJ. Pesticides and Health in Public Health. Seoul: Korea University Press; 2013. 99-112.
7. Hofmann JN, Beane Freeman LE, Lynch CF, Andreotti G, Thomas KW, Sandler DP, et al. The Biomarkers of Exposure and Effect in Agriculture (BEEA) Study: Rationale, design, methods, and participant characteristics. J *Toxicol Environ Health A.* 2015; 78(21–22): 1338-1347.
8. Song JS, Ki S, Kwon D, Choi HS, Yu HY. Biological Monitoring of the Exposure Level of Organophosphorus and Pyrethroid Pesticides in Floriculture Workers and Florists. *Korean J Pestic Sci.* 2014; 18(1): 41-47.
9. Song JS, Choi HS, Yu HY, Park BG, Kwon D. Evaluation of Exposure to Pyrethroid Pesticides according to Sprayer Type using Biological Monitoring. *Korean J Pestic Sci.* 2016; 20(4): 300-304.
10. Kim JH, Kim J, Cha ES, Ko Y, Kim DH, Lee WJ. Work-related risk factors by severity for acute pesticide poisoning among male farmers in South Korea. *Int J Environ Res Public Health.* 2013; 10(3): 1100-1112.
11. Bravo R, Caltabiano LM, Weerasekera G, Whitehead RD, Fernandez C, Needham LL, et al. Measurement of dialkyl phosphate metabolites of organophosphorus pesticides in human urine using lyophilization with gas chromatography-tandem mass spectrometry and isotope dilution quantification. *J Expo Anal Environ Epidemiol.* 2004; 14(3): 249-259.
12. Schettgen T, Koch HM, Drexler H, Angerer J. New gas chromatographic–mass spectrometric method for the determination of urinary pyrethroid metabolites in environmental medicine. *J Chromatogr B.* 2002; 778(1): 121-130.
13. Ueyama J, Saito I, Kamijima M, Nakajima T, Gotoh M, Suzuki T, et al. Simultaneous determination of urinary dialkylphosphate metabolites of organophosphorus pesticides using gas chromatography–mass spectrometry. *J Chromatogr B.* 2006; 832(1): 58-66.
14. Arcury TA, Laurienti PJ, Chen H, Howard TD, Barr DB, Mora DC, et al. Organophosphate Pesticide Urinary Metabolites Among Latino Immigrants. *J Occup Environ Med.* 2016; 58(11): 1079-1086.
15. Prapamontol T, Sutan K, Laoyang S, Hongsibsong S, Lee G, Yano Y, et al. Cross validation of gas chromatography-flame photometric detection and gas chromatography-mass spectrometry methods for measuring dialkylphosphate metabolites of organophosphate pesticides in human urine. *Int J Hyg Environ Health.* 2014; 217(4-5): 554-566.
16. International Agency for Research on Cancer. IARC Monographs Volume 112: evaluation of five organophosphate insecticides and herbicides. *Environ Heal.* 2014; 112(1): 425-433.
17. Park J. Environment and Health?: An Overview of Current Trends at WHO and OECD. *J Environ Health Sci.* 2013; 39(4): 299-311.
18. Park C, Yu S Do. Status and Prospects of the Korean National Environmental Health Survey (KoNEHS). *J Environ Health Sci.* 2014; 40(1): 1-9.
19. Schulz C, Angerer J, Ewers U, Heudorf U, Wilhelm M. Revised and new reference values for environmental pollutants in urine or blood of children in Germany derived from the German Environmental Survey on Children 2003-2006 (GerES IV). *Int J Hyg Environ Health.* 2009; 212(6): 637-647.
20. Korean Society of Environmental Health. 1st Korean National Environmental Health: Integrated

analysis of survey data and preparation of national statistics. 2011.
21. Osaka A, Ueyama J, Kondo T, Nomura H, Sugiura Y, Saito I, et al. Exposure characterization of three major insecticide lines in urine of young children in Japan-neonicotinoids, organophosphates, and pyrethroids. *Environ Res.* 2016; 147: 89-96.
22. Raymer JH, Studabaker W, Gardner M, Talton J, Quandt SA, Chen H, et al. Pesticide Exposures to Migrant Farmworkers in Eastern NC: Detection of metabolites in farmworker urine associated with housing violations and camp characteristics. *Am J Ind Med.* 2014; 57(3): 323-337.
23. Ueyama J, Kimata A, Kamijima M, Hamajima N, Ito Y, Suzuki K, et al. Urinary excretion of 3-phenoxybenzoic acid in middle-aged and elderly general population of Japan. *Environ Res.* 2009; 109(2): 175-180.
24. Jang I, Kim H, Lee S, Choi K, Suh SJ. Analysis of Pesticide Applications on Apple Orchards in Geochang , Korea. *Korean J Pestic Sci.* 2015; 19(2): 93-100.
25. Garfitt SJ, Jones K, Mason HJ, Cocker J. Exposure to the organophosphate diazinon: data from a human volunteer study with oral and dermal doses. *Toxicol Lett.* 2002; 134(1): 105-113.
26. Aprea C, Stridori A, Sciarra G. Analytical method for the determination of urinary 3-phenoxybenzoic acid in subjects occupationally exposed to pyrethroid insecticides. *J Chromatogr B Biomed Sci Appl.* 1997; 695(2): 227-236.