

환경오염물질 노출수준의 계절적 변이와 그 함의 - 제2기 국민환경보건기초조사(2012-2014)

황문영 · 류정민 · 권영민 · 홍수연 · 박충희†
국립환경과학원, 환경건강연구부

Seasonal Variations of Exposure to Environmental Chemicals: Implication from the Korean National Environmental Health Survey (2012-2014)

Moon-Young Hwang, Jung-Min Ryu, Young-Min Kwon,
Soo-Yeon Hong, and Choong-Hee Park†

Environmental Health Research Division, National Institute of Environmental Research

ABSTRACT

Objectives: Human biomonitoring (HBM) is a measurement of the chemicals and their metabolites in human biological samples and has been successfully employed to determine the exposure levels of environmental chemicals. In this study, we analyzed seasonal variations of the blood or urinary levels of chemicals, and assessed that these differences could affect the results of association study.

Methods: The Korea National Environmental Health Survey (KoNEHS) is a nationwide survey that analyzes exposure levels of environmental pollutants, 19 kinds of chemicals including heavy metals and organic chemicals, and the exposure factors in the general population. Based on KoNEHS data, we analyzed the levels of chemicals concentrations over the total survey period (2012-2014) and each season, and assessed the association of thyroid measures with phthalate metabolite and BPA.

Results: Exposure levels of blood mercury and lead were lower in summer compare to winter. Bisphenol A and PAHs metabolites were higher in spring and summer, but lower in autumn. VOCs metabolites were generally lower in summer and autumn. Phthalate metabolites were higher in all other seasons than in winter. Pyrethroid metabolite, 3-PBA, was higher in summer and autumn. Regarding seasonal variation of chemical exposures, the statistical significance and size of effects between thyroid measures and phthalate and BPA were changed with season.

Conclusion: Seasonal variations of chemical exposure and health outcome should be considered for interpreting biomonitoring results from a public health context.

Keywords: Biomonitoring, seasonal variation, thyroid measures, phthalates, bisphenol A

I. 서론

사람을 대상으로 하는 바이오모니터링은 생체조직 또는 혈액, 소변과 같은 체액에서의 원 물질 또는

그 대사체를 측정하여 환경오염물질 노출의 지표 또는 정량적인 노출량을 확인하기 위하여 활용되어왔다. 바이오모니터링 연구는 환경노출의 확인과 법에 근거한 정책결정의 유효성을 확인하는 자료를 제공

†Corresponding author: Environmental Health Research Division, National Institute of Environmental Research, Hwankyong-ro 42, Seo-gu, Incheon, 22689, Republic of Korea, Tel: +82-32-560-7126, E-mail: whoispch@gmail.com
Received: 30 November 2018, Revised: 10 December 2018, Accepted: 20 December 2018

한다.¹⁾ 매체 농도를 이용한 위해성평가 과정에서 최악의 시나리오(worst case scenario)를 사용하여 노출량이 과다 추정되는 경우와 다르게, 바이오모니터링 결과는 실질적인 인체노출량을 도출 할 수 있다.^{2,3)} 이러한 장점을 바탕으로 바이오모니터링은 화학물질의 노출수준, 생화학적 그리고 생물학적 영향에 대한 모니터링으로 확대하고 있다.^{4,5)}

현재, 국가수준, 특정인구 집단 또는 지역사회 단위의 바이오모니터링 연구가 세계적으로 다양하게 진행되고 있다. 국가단위의 모니터링 연구는 다양한 화학물질 노출수준의 확인과 다양한 건강영향지표에 대한 조사를 포함하고 있으며, 국가의 일반 인구집단의 대표 노출값을 산출하도록 표본설계가 된다.^{6,7)} 미국과 캐나다의 바이오모니터링 연구는 조사기간을 2년 단위로 지속적으로 진행하고 있으며, 한국에서는 2005년부터 2008년까지 사전조사단계를 거친 후, 2009년부터 환경보건법에 근거하여 국민환경보건기초조사(이하 기초조사)를 3년 단위로 진행하고 있다.^{8,9)}

다년간 진행되는 바이오모니터링은 지역 및 인구 집단에 따른 노출수준을 확인하는 것 이외에 다양한 요인에 따라 분석이 가능하며, 계절적인 요인에 의한 노출수준의 평가도 가능하다. 기초조사의 경우에도 조사연도 뿐 만 아니라 계절적인 분포도 고려하여 표본설계가 되었다. 환경노출에 의한 건강영향과 관련된 연구에서는 하나 이상의 계절을 포함한 많은 연구가 있으며, 환경매체, 식품 및 바이오모니터링 등 다양한 연구에서 노출수준에서의 계절변이를 확인할 수 있다.^{10,11,12,13)} 또한, 화학물질 노출 이외에 갑상선, 성 호르몬을 포함하는 내분비계와 혈압 등 인체의 생리 및 임상적인 지표를 포함하는 건강영향(Health Outcome) 연구에서도 계절변이를 확인할 수 있다.^{14,15,16)}

화학물질에 대한 노출수준의 계절변이는 영향변수와의 관련성에 영향을 줄 수 있으며, 이와는 반대로 영향변수가 노출수준에 영향을 미쳐서 분석결과가 변화될 수 있다. 미국 NHANES자료를 이용하여 UV 차단 크림과 비타민 D와의 관련성을 분석한 연구에서는, 예측변수와 영향변수 모두가 계절과 관련되어 있다는 결과의 해석 과정에 추정된 계절을 고려해야 한다고 보고하였다.¹⁷⁾ 이와 같이, 조사대상의 건강영향지표 같은 종속변수 또는 화학물질 농도 등 예측변수가 계절특성을 갖고 있다면 분석과정에서 고려

해야 한다. 계절적 연속성이 없는 바이오모니터링 결과와 건강영향 지표 사이의 관련성을 분석하는 단면조사, 노출지표로 환경 또는 생체시료 분석이 포함된 코호트 연구에서 계절변이를 고려해야 한다.

본 연구는 2012년에서 2014년까지 진행된 제2기 국민환경보건기초조사의 한국의 성인 인구집단을 대상으로 화학물질 노출의 계절적 변이를 확인하고, 이러한 차이가 건강영향과의 상관성분석에 미치는 영향을 평가하고자 한다.

II. 연구방법

국민환경보건기초조사는 우리나라 국민을 대표할 수 있는 바이오모니터링 프로그램으로, 체내 환경오염물질의 노출수준을 조사하기 위하여 3년 단위로 진행되었다. 제2기 기초조사의 대상 인구는 2010년 기준으로 집단생활을 하는 인구를 제외한 총인구를 대상으로 하였고, 전국대표 추정치를 구하기 위하여 기존의 바이오모니터링 결과를 바탕으로 6,000명을 대상으로 하였다. 2012년부터 2014년까지, 매년 2,000명씩 계절분포를 고려하여, 3년간 총 6,478명을 조사하였다. 생체시료 중 환경유해물질 분석 항목은 총 21종을 분석하였으며, 간, 신장, 혈액 및 호르몬 등 기본적인 임상검사를 포함하였다.¹⁸⁾

본 연구는 2단계 층화 계통추출방법으로 설계되어, 추출 및 미응답 확률의 차이와 2010년 인구주택 총조사의 사후 층화를 보정하기 위하여 설계 가중치를 이용하였다. 조사된 표본의 가중치는 설계가중치, 무응답조정 및 모집단 추계인구조정을 위한 사후층화를 반영하도록 산정되었다. 통계분석은 다단계층 표본설계뿐 아니라 인구가중치를 조정하기 위하여 표본설계를 반영한 SAS 분석법(PROC SURVEYFREQ, PROC SURVEYMEANS, and PROC SURVEYREG)를 사용하였다. 노출수준의 계절적 분포를 확인하기 위하여 조사기간 전체, 계절(겨울: 12-2월, 봄: 3-5월, 여름: 6-8월, 가을: 9-11월)로 구분하였으며, 표본설계를 반영하여 계절에 따른 노출수준을 산출하였다.

기술통계는 기하평균 및 분위수 농도를 제시하였으며, 계절에 따른 차이는 겨울철 노출수준 대비 각 계절의 노출수준의 비(ratio)로 나타내었다. 계절에 따른 화학물질 노출수준 차이의 유의성은 겨울철 농도를 기준으로 각 계절별 농도 수준의 차이를 비교

하여 확인하였다. 측정값이 정규분포를 하지 않는 경우에는 로그변환을 하였고, 검출한계 미만의 값은 MDL의 $1/\sqrt{2}$ 로 대체하였다.

화학물질 노출과 건강영향간의 상관성에 미치는 계절영향을 분석하기 위한 사례연구로는 본 연구진이 기존에 발표하였던 갑상선 호르몬과 프탈레이트 및 BPA 데이터를 활용하였으며,¹⁹⁾ DEHP 대사체 중 MEHHP와 BPA를 독립변수로 TSH, T4, T3 호르몬을 종속변수로 상관성 분석을 하였다. 결과해석의 간결함을 위하여 공변량으로 성, 연령만을 포함하여 모델을 구성하였다. 모델에 포함된 예측변수는 측정농도를 사용한 모델과 크레아티닌을 공변량으로 사용한 모델로 구성하여 분석하였다.^{20,21)} 전체 6,478명의 대상자 중, 요 시료를 채취하지 못하였거나 설문조사에서 갑상선 질환이 있거나 이와 관련 약을 복용한다고 응답한 참여자를 제외하고 총 6,003명을 분석대상자로 하였다. 요 중 크레아티닌 농도 값에 따라 연구대상자를 제외하지는 않았다.

통계분석은 SAS 소프트웨어 9.4버전을 사용하였다.

III. 연구결과 및 고찰

1. 계절에 따른 노출수준의 변이

기초조사에서 분석대상인 물질의 계절에 따른 측정농도 및 크레아티닌 보정 기하평균을 Table 1에, 겨울철 대비 각 계절의 농도 비를 Table 2에 나타내었다. 혈 중 수은과 납은 겨울에 비하여 여름이 0.91배 정도로 유의하게 낮았다. 요 중 카드뮴은 여름철이 겨울에 비하여 1.32배 정도 높았으며, 요 중 수은은 겨울철에 비하여 다른 계절이 모두 낮았으나 가을만 0.90배 유의한 것으로 나타났다. 크레아티닌 보정농도도 측정농도와 비슷한 경향이었으나 일부 계절에서는 통계적 유의성이 변화됨을 확인하였다.

환경성 페놀류 중 BPA는 겨울에 비하여 봄에 1.17배, 여름에 1.82배 높은 수준을 나타내었으나, 가을철에는 0.87배 정도 낮았으며 통계적으로 유의하였고, 트리클로산(triclosan)은 계절에 따른 유의한 차이를 확인할 수 없었다. 휘발성유기화합물(VOCs) 대사체는 뮌콘산(muconic acid)을 제외하고 일반적인

Table 1. Measured and creatinine-adjusted geometric mean by season

		Measured Conc.					Creatinine-adjusted Conc.					
		Total	Spring	Summer	Autumn	Winter	Total	Spring	Summer	Autumn	Winter	
Blood	Metals	Hg	3.11	3.12	2.96	3.11	3.24					
		Pb ($\mu\text{g}/\text{dL}$)	1.94	2.00	1.81	1.94	2.00					
	$(\mu\text{g}/\text{L})$	Cd	0.38	0.37	0.45	0.37	0.34	0.50	0.48	0.52	0.55	0.46
		Hg	0.38	0.38	0.39	0.36	0.4	0.49	0.48	0.44	0.50	0.52
		DEHP	50.4	47.1	65.0	45.6	46.8	70.4	66.1	78.9	70.4	68.2
Phthalate	MBzP	2.82	2.68	5.06	2.43	1.97	3.28	3.71	6.14	3.72	2.65	
	MnBP	23.6	18.3	42.5	24.4	18.1	32.5	25.4	51.4	37.6	25.3	
	Phenol	BPA	1.09	1.09	1.69	0.81	0.93	1.49	1.49	2.04	1.23	1.32
TCS		-	0.94	0.97	0.90	0.91	1.17	1.17	1.12	1.19	1.19	
Urine $(\mu\text{g}/\text{L})$	VOCs (mg/L)	Hippuric Acid (g/L)	0.12	0.14	0.13	0.10	0.11	0.17	0.19	0.17	0.17	0.15
		Muconic Acid	58.8	55.7	63.8	57.6	58.7	81.2	78.7	77.0	87.7	83.1
		Phenylglyoxylic Acid	0.16	0.21	0.11	0.12	0.18	0.21	0.29	0.13	0.19	0.25
		Mandelic Acid	0.15	0.20	0.13	0.12	0.16	0.21	0.27	0.16	0.18	0.23
		Methyl Hippuric Acid	0.23	0.28	0.20	0.20	0.26	0.32	0.37	0.24	0.30	0.36
	PAHs	1-OH-Pyrene	0.15	0.16	0.18	0.12	0.15	0.20	0.21	0.21	0.17	0.20
		2-Napthol	2.22	2.01	2.80	1.96	2.19	3.07	2.80	3.40	3.03	3.12
		1-OH-Phenathrene	0.10	0.11	0.11	0.08	0.09	0.12	0.14	0.13	0.11	0.11
		2-OH-Fluorene	0.27	0.25	0.29	0.26	0.26	0.37	0.36	0.35	0.39	0.38
	Pyrethroid	PBA	1.41	1.25	1.73	1.48	1.28	1.94	1.71	2.13	2.35	1.77
	Creatinine (g/L)	0.72	0.73	0.83	0.65	0.69						

Table 2. Ratio of chemical concentration of each season to winter

		Measured			Creatinine-adjusted			
		Spring	Summer	Autumn	Spring	Summer	Autumn	
Blood	Metals	Hg	0.96	0.91	0.96			
		Pb	1.00	0.91	0.97			
		Cd	1.09	1.32	1.09	1.04	1.13	1.20
	Phthalate	Hg	0.95	0.98	0.90	0.92	0.85	0.96
		DEHP	1.01	1.39	0.97	0.97	1.16	1.03
		MBzP	1.36	2.57	1.23	1.40	2.32	1.40
	Phenol	MnBP	1.01	2.35	1.35	1.00	2.03	1.49
		BPA	1.17	1.82	0.87	1.13	1.55	0.93
		TCS	1.03	1.07	0.99	0.98	0.94	1.00
Urine	VOCs	Hippuric Acid	1.27	1.18	0.91	1.27	1.13	1.13
		Muconic Acid	0.95	1.09	0.98	0.95	0.93	1.06
	PAHs	Phenylglyoxylic Acid	1.17	0.61	0.67	1.16	0.52	0.76
		Manderic Acid	1.25	0.81	0.75	1.17	0.70	0.78
		Methyl Hippuric Acid	1.08	0.77	0.77	1.03	0.67	0.83
		1-OH-Pyrene	1.07	1.20	0.80	1.05	1.05	0.85
	Pyrethroid PBA	2-Napthol	0.92	1.28	0.89	0.90	1.09	0.97
		1-OH-Phenathrene	1.22	1.22	0.89	1.27	1.18	1.00
			0.96	1.12	1.00	0.95	0.92	1.03
			0.98	1.35	1.16	0.97	1.20	1.33

Bold: p<0.05, *Italic bold:* p<0.1

로 겨울에 비하여 봄철이 높은 수준으로, 여름과 가을은 0.61-0.81배 낮았으며, 대부분의 계절에서 통계적으로 유의하였다. 반면에 마노산(hippuric acid)은 봄과 여름철이 모두 겨울보다 높은 수준이었다. 다환방향족탄화수소(PAHs) 대사체 중 1-하드록시-파이렌(1-OH-Pyrene)과 1-하이드록시페난트렌(1-OH-Phenanthrene)은 겨울철에 비하여 봄과 여름철에는 1.07-1.22배 높은 수준으로, 가을철에는 0.80, 0.89배 정도로 유의하게 낮은 수준이었다. 2-나프톨(2-napthol)은 여름에만 겨울보다 높았으며, 봄과 겨울철에는 노출수준이 낮았으나 통계적으로 유의하지는 않았다. 피레스로이드 대사체는 여름, 가을철 모두 겨울에 비하여 1.35, 1.16배 유의하게 높은 수준이었다. 프탈레이트 대사체는 일반적으로 겨울철에 비하여 다른 계절에 노출수준이 높았으며, 특히 여름철에는 1.39-2.57배 정도로 통계적으로 유의하게 높았다. 크레아티닌 보정 농도도 측정농도와 비슷한 경향을 보였다. 혈 중 수은은 주요 노출원이 어패류로 알려져 있으며, 여름철에 낮은 수준이었다가 10월 이후 증가

하여 겨울철에 가장 높은 수준을 나타내고 이후 여름철까지 감소하는 전형적인 경향을 나타내었다. 우리나라의 국민건강영양조사(2013-2015) 결과, 어패류를 통한 에너지 섭취량은 여름철은 54.1 Kcal로 봄, 가을 및 겨울철은 65.2, 67.5, 71.3 Kcal로 보고하고 있어 기초조사의 월별 노출수준과 유사한 경향이였다.²²⁾ 낮은 겨울철이 상대적으로 높게, 카드뮴은 겨울 이외의 계절이 상대적으로 높았으며 여름철에 유의하게 반대의 경향을 나타내었다. 한국인의 납과 카드뮴의 주요 노출원은 곡류와 채소류로 알려져 있어 동일한 계절변이를 보일 것으로 추정하였으나, 일반인의 계절에 따른 식품종류별 에너지 섭취 비율 고려할 때, 곡류 섭취량은 계절에 따른 차이가 없었고 채소류는 여름철에 소비량이 증가하였으며 어패류는 감소한 것으로 나타나, 혈 중 납의 경우에도 채소류 보다는 어패류의 소비감소에 의한 영향이 큰 것으로 추정된다.²²⁾ 요 중 카드뮴은 장기노출(long-term exposure)의 지표로 알려져 있어 계절에 따른 노출수준과 생체축적의 영향이 복합적으로 작용된 것이라

판단된다²³⁾. 요 중 수은은 무기수은(inorganic Hg)의 지표로 주로 환경을 통하여 노출 되어, 혈 중 수은과는 달리 환경의 영향을 받는 VOCs, PAHs와 유사하게 가을철에 낮은 수준이었다. 중금속은 식이를 통한 노출 외에 입자상 물질을 포함하는 환경매체를 통해서도 노출이 일어날 수 있으며, 입자상 물질(PM)의 농도뿐 아니라 PM에 포함된 중금속 농도도 계절에 따라 변화한다는 연구도 있다.^{24,25)} PM10에 포함된 중금속은 대부분 봄철이 여름보다 높게 나타나고 있으며, 본 연구에서도 혈 중 납은 봄철이 여름보다 높게 나타나 기존의 연구와 일치하는 결과이다²⁶⁾. 인체에서 반감기가 상대적으로 긴 중금속의 특성을 고려하여 계절별 혈 중 중금속의 노출원에 대한 추가적인 연구가 필요한 것으로 나타났다.

프탈레이트 대사체는 일반적으로 고분자량 프탈레이트는 식품섭취와 식품용기, 물병 등이, 저분자량 프탈레이트는 화장품 등 개인위생용품의 사용이 주요 노출원으로 알려져 있는데, DEHP는 여름철에 높았고 다른 계절은 비슷한 수준이었으며, MBzP, MnBP는 여름과 가을철 보단 높은 수준이었는데, 개인위생용품 또는 화장품의 계절적 사용경향과 비슷한 노출수준을 보였다^{27,28)}. 환경성 페놀류 중 BPA는 저분자량 프탈레이트와 비슷하게 여름에는 높은 수준이었다가 가을에 낮은 수준으로 나타났는데, 여름철에서 가을철 사이에 급격한 변화를 보이는 것에 대한 노출평가가 필요하다. BPA, 벤젠 대사체인 hippuric acid, PAHs 대사체인 1-OH-pyrene, 1-OH-phenanthrene과 같이 봄, 여름철에 높았다가 가을철에 노출수준이 낮아지는 물질은 8월을 기점으로 노출수준이 급격하게 변화함을 확인하였다(월별 데이터는 수록하지 않음). VOCs와 PAHs의 주요 노출원은 주로 대기를 통한 환경노출로 환기 등이 많이 이루어지는 여름 이후에는 노출수준이 감소하였다가 겨울과 봄철에 상대적으로 높은 수준으로 노출되고 있으며, PAHs 대사체는 여름에도 높은 수준임을 확인하였다. 대기 중 VOCs의 농도는 계절변이를 보이고 있으며, 이는 자동차 연료의 기화, 물리적인 확산과 이동과 관련이 있으며 이러한 요인들은 온도와 관련이 있기 때문에 계절에 따른 차이를 나타낸다. 대기 중 PAHs의 농도는 주로 겨울철이 다른 계절에 비하여 높은 것으로 알려져 있어 본 연구의 결과와는 상충되는 것으로 보이나,²⁹⁾ 식이도 PAHs노

출의 중요한 요인으로 알려져 있다.³⁰⁾ 본 연구에서 PAHs 노출수준은 환경노출에 의한 영향보다는 식이를 통한 영향력이 더 큰 것으로 판단되며, 일반 인구집단의 여름철 PAHs의 노출원에 대한 추가적인 조사가 있어야 한다. 프레쓰로이드계 농약의 대사체인 3-BPA는 여름과 가을철에 높은 노출 수준을 보였는데, 피레스로이드의 노출원은 다양하지만, 주로 식이를 통한 노출과 가정용 살충제 등을 통한 호흡기 노출임을 고려할 때, 계절에 따른 일반적인 경향을 보이는 것으로 판단된다.^{31,32)}

화학물질 노출수준의 계절적 변이는 일반적으로 겨울철보다 봄철이 높은 수준인 것으로 나타났으며, 특히, 혈 중 중금속 및 일부 VOCs를 제외하면 여름철의 노출수준이 겨울뿐만 아니라 봄철에 비해서도 높았다. 반면에 조사대상 물질의 노출수준은 프탈레이트를 제외하면 일반적으로 가을철이 겨울철보다 낮은 수준이었다. 프탈레이트 대사체는 모든 계절에서 겨울철보다 높은 수준이었으며 그 차이도 큰 것으로 나타났다. 조사대상 물질 전체를 볼 때, 계절에 따른 변이가 겨울철에 비하여 최대 0.61배 낮거나 2.57배 높았다.

2. 사례연구

사례연구를 위하여 본 연구진이 기존에 발표하였던 논문에 사용한 데이터를 사용하였으며, 계절에 따른 MEHHP 및 BPA노출 수준은 Table 3에 나타내었다.¹⁹⁾

MEHHP의 노출수준은 전체 18.1 µg/L이었으며, 겨울철, 봄, 여름, 가을철에 각각 17.8, 15.6, 23.3, 16.5 µg/L이었고 겨울철에 비하여 봄에는 0.88배, 여름철은 1.31배의 유의한 차이를 보였다(Table 3). MEHHP의 농도범위의 비(75% 농도와 25% 농도의 비)는 가을철이 3.53으로 컸으며, 겨울과 봄철이 2.78로 비슷하였다. BPA의 경우, 전체기간의 기하평균이 1.13 µg/L이었으며 여름철에는 1.70 µg/L로 겨울에 비하여 1.68배 높았고, 가을철에는 0.82배 낮았다. 농도분포 범위는 겨울철에 비하여 다른 계절에 농도분포 범위가 넓으며, 특히 여름과 가을철에 그 범위 비가 큰 것을 알 수 있었다.

중속변수인 갑상선호르몬의 농도는 인체에 노출되는 화학물질에 비하여 계절에 따른 노출수준 및 노출범위의 변이가 크지 않았다(Table 4). TSH는 전체

Table 3. Geometric means MEHHP and BPA by season (µg/L)

	MEHHP		BPA	
	GM	Ratio ^a	GM	Ratio ^a
Total	18.1		1.13	
Spring	15.6**	(0.88)	1.09	(1.08)
Summer	23.3**	(1.31)	1.70**	(1.68)
Autumn	16.5	(0.93)	0.83**	(0.82)
Winter	17.8	(ref)	1.01	(ref)

(): ratio of each season to winter

^aRatio of (75 percentile concentration) to (25 percentile concentration)

Table 4. Geometric means of thyroids measures and urinary creatinine by season

	TSH (uIU/mL)		T4 (µg/dL)		T3 (ng/dL)		Creatinine (g/L)	
	GM	Ratio ^a	GM	Ratio ^a	GM	Ratio ^a	GM	Ratio ^a
Total	1.83	2.28	7.96	1.26	100	1.27	0.74	2.56
Spring	1.89*	2.26	7.82**	1.27	101	1.28	0.73	2.52
Summer	1.80	2.32	7.87	1.26	94.4**	1.26	0.83**	2.40
Autumn	1.83	2.30	8.22**	1.27	100	1.25	0.66**	2.66
Winter	1.79	2.31	8.01	1.25	100	1.26	0.75	2.40

^aRatio of (75 percentile concentration) to (25 percentile concentration)

*p<0.1, **p<0.05 (each season vs winter)

평균이 1.83이었으며, 겨울이 1.79로 가장 낮고 봄이 1.89로 경계수준에서 유의하게 높았다. 농도 범위 비도 2.26-2.31로 나타났다. T4 호르몬은 겨울이 8.01이었으며 봄에 7.82로 유의하게 낮았고 가을에 8.22로 유의하게 높았다, 농도 범위의 비도 1.25-1.27로 상대적으로 안정적인 농도분포를 보이는 것으로 나타났다. T3호르몬은 전체 및 계절적 변이가 거의 없었으며 여름이 94.4로 유의하게 낮은 수준이었다. 요 중 측정 화학물질의 크레아티닌 보정을 위하여 모델에 공변량으로 포함된 크레아티닌은 겨울에 비하여 여름이 0.83으로 유의하게 높게, 가을에 0.66으로 유의하게 낮은 수준이었다.

갑상선 호르몬과 MEHHP 및 BPA의 계절에 따른 상관성을 분석한 결과는 Table 5에 나타내었다. 모델은 비교의 간결성을 위하여 성과 연령만 보정하였으며, 전체 기간(total), 각 계절 및 계절을 공변량에 포함시킨(covariate) 결과를 제시하였으며, 예측변수(MEHHP, BPA)는 측정농도를 사용한 모델 1과 크레아티닌을 공변량으로 포함시킨 모델 2로 구분하였다.

계절을 구분하지 않은(total) 경우와 계절을 공변량으로 포함시킨(covariate) 경우, 갑상샘 호르몬과

MEHHP, BPA 사이의 상관계수는 크기나 통계적 유의성이 거의 같은 경향임을 확인할 수 있다. 이는 전체 기간에 계절이 모두 포함되어 있기 때문에 당연한 결과이다.

MEHHP와 갑상샘 호르몬 사이의 상관계수는, TSH 경우, Model 1에서 전체기간 결과와 같이 모든 계절에서 유의하지 않았으며, Model 2에서는 전체기간에서는 유의하지 않았으나 겨울철에 회귀계수의 크기가 커지며 경계수준의 유의성이 나타났다. T4 호르몬의 경우, Model 1에서는 봄과 겨울철에 경계수준의 유의하였으며, 전체기간의 결과에 비하여 방향은 같으나 영향의 크기가 커졌고, Model 2에서는 여름철에는 경계수준의, 겨울철에는 영향의 크기가 커지면서 유의하였다. T3호르몬의 경우, Model 2에서 봄철에만 유의한 결과가 나타났다.

BPA와 갑상샘 호르몬 사이의 관련성은, TSH의 경우 Model 1에서 겨울철에 효과의 크기가 크며 유의하였고, Model 2에서는 가을과 겨울에 효과의 크기가 큰 경계수준에서 유의하였다. T4 호르몬의 경우, Model 1에서는 전체기간에서 유의하지 않았으나 봄철에 유의하였다. T3 호르몬에서는 계절변화에 따른

Table 5. Regression coefficient between thyroid measures and MEHHP and BPA

		Model 1			Model 2		
		TSH	T4	T3	TSH	T4	T3
MEHHP	Total	0.003	-0.007*	-0.003	0.024	-0.015**	-0.005
	Spring	0.034	-0.014*	0.007	0.048	-0.011	0.019**
	Summer	-0.007	-0.007	0.005	-0.001	-0.019*	-0.002
	Autumn	0.015	0.005	-0.000	0.004	-0.007	-0.006
	Winter	-0.016	-0.011*	-0.006	0.062*	-0.033**	-0.008
	Covariate	0.006	-0.006*	0.001	0.028	-0.017**	0.001
BPA	Total	-0.024**	-0.003	-0.002	-0.026**	-0.004	-0.002
	Spring	-0.001	-0.011**	0.003	-0.009	0.006	0.005
	Summer	-0.026	-0.001	0.003	-0.029	-0.009	-0.000
	Autumn	-0.021	0.001	0.003	-0.033*	-0.002	-0.005
	Winter	-0.056**	0.008	-0.002	-0.042*	-0.005	0.006
	Covariate	-0.025**	-0.001	0.002	-0.026**	-0.002	0.002

Model 1: adjusted for age, sex

Model 2: adjusted for age, sex, urinary creatinine

Covariate: season was added as covariate in the model.

*p<0.1, **p<0.05

회귀계수의 유의성이 나타나지 않았다.

사례분석 결과에서, 전체기간을 대상으로 한 분석 결과와 계절을 공변량으로 추가한 결과는 회귀계수의 크기나 방향성이 비슷하게 나타났고, 계절별로 분석할 경우 계절에 따라 유의성이 변하였고, 효과의 크기가 커진다는 것도 확인하였다. 여러 계절에 걸친 조사의 경우, 조사에 포함된 계절에 따라 상관성의 크기, 유의함이 변할 수 있다는 것을 확인한 것이다. 다만, 갑상선 호르몬과 MEHHP, BPA사이의 상관성이 계절에 따라 변화됨은 확인하였으나 일정한 경향성은 확인하지 못하였다. 이것은 갑상선 호르몬의 계절적 변이가 MEHHP, BPA노출의 계절에 따른 변이에 비하여 갑상선 호르몬의 계절에 따른 생리학적 변이가 크기 때문일 수도 있다. 갑상선 호르몬 수준에 영향을 미치는 요인으로서 생리적인 특성을 포함하여 다양한 환경요인이 작용한 결과로 판단되며, 추가적인 연구가 필요하다. 또한, 봄과 겨울철에 농도 분포의 비가 다른 계절에 비하여 작았으며, 통계적으로 유의한 상관성이 봄과 겨울철에 많이 나타나고 있어 평균적인 노출 수준 뿐 만 아니라 농도분포에 대한 추가적이 분석이 필요할 것으로 판단된다.

본 연구에서는 우리나라 대표 바이오모니터링 프

로그래밍 국민환경보건기초조사 결과에서 조사대상 화학물질의 노출수준이 계절에 따라 최대 2.5배 정도까지 차이가 있으며, 노출수준과 건강영향 지표간의 상관성의 크기와 통계적 유의성이 계절에 따라 변한다는 것을 확인하였다. 기존의 많은 연구에서 환경오염 물질의 매체 또는 인체 노출측정이 포함되어 있고 이러한 노출의 측정이 일부의 특정기간만을 대상으로 이루어졌다. 이러한 결과는 대상 지역의 평균적인 환경 또는 인체노출을 반영하지 못할 수도 있으며, 건강영향과의 상관성분석에서도 서로 다른 결과가 도출될 가능성이 있음을 의미한다. 또한, 바이오모니터링 결과를 정책에 활용하기 위하여 생물학적 동등량 (Biomonitoring equivalents, BEs)을 적용하여 인체노출과정의 불확실성을 줄이고 정책적으로 활용하려는 다양한 연구가 있다.³³⁾ BEs를 도출하고 정책적으로 활용하기 위하여 특정 시기나 계절에 한정된 분석자료를 사용하는 것은 상이한 결과를 도출할 수 있다. 즉, 화학물질 노출의 계절적 변이는 환경측정 또는 바이오모니터링 결과를 분석하고 평가할 때 연간 평균 노출수준으로 일반화하기 어렵고, 화학물질의 노출과 건강영향 지표가 유사한 계절변이를 나타내는 연구에서는 결과의 해석에 주의해야 함을 의미한다. 분석결과와 통계적 유의성 이외에,

화학물질의 환경매체에서의 수준과 거동, 건강영향을 일으키는 기전에 대한 보다 정밀한 고찰이 필요하다.

본 연구에서는 인구 집단에서의 계절에 따른 화학물질 노출과 이에 따른 건강영향을 분석한 것으로 개인 내(intra-personal variation)의 변이를 분석한 것이 아니라는 한계점이 있다. 화학물질의 인체노출과 관련하여 환경, 식이 및 개인용품 등을 통한 환경노출이 포함되지 않아 화학물질 노출수준의 계절변이 원인에 대한 자세한 분석이 어렵다는 점 또한 한계점이나, 이는 본 연구의 목적을 벗어나며, 다른 주제로 다루어져야 한다. 또한, 프탈레이트와 BPA는 반감기가 매우 짧은 물질로 샘플링 시간이 중요하나 이에 대한 분석이 포함되지 않았으며, 갑상선 호르몬 또한 일변화 주기가 있으나 이에 대한 결과의 해석도 역시 포함되지 않았다는 한계점이 있다. 이러한 한계점에도 불구하고, 우리나라 인구집단을 대표하는 조사로써, 화학물질의 노출수준이 계절에 따라 변화한다는 것을 바이오모니터링 결과로 확인한 것이며, 환경노출과 건강영향에 대한 연구에서 조사된 계절에 따라 분석 결과에 차이가 있을 수 있다는 것을 확인한 것에 의의를 둘 수 있다.

IV. 결 론

본 연구는 우리나라를 대표하는 인구집단을 대상으로 한 바이오모니터링 결과를 분석한 것으로 조사 대상 물질의 계절적 분포에 대한 일반화가 용이하다는 장점이 있다. 분석대상 물질의 노출 수준은 대부분 계절에 따른 차이를 나타내었으며, 식이, 개인위생용품 및 환경 등 노출원에 따라 계절적 특성을 나타내었다. 환경측정 뿐 만 아니라 바이오모니터링 결과를 이용한 위해성평가 또는 단면조사 등 역학조사의 해석과정에서 계절의 특성이 반영될 필요성이 있음을 확인한 것이다.

감사의 글

본 연구는 국립환경과학원 연구사업 R&D 예산으로 수행되었습니다(NIER-2012-00-01-944).

References

1. National Research Council, 2006. Human biomoni-

toring for environmental chemicals. In: Committee on Human Biomonitoring for Environmental Toxicants. The National Academies Press, Washington, DC.

2. Angerer, J., Bolt, H.M., Brüning, T., Drexler, H., Eikmann, T., Ewers, U., Gieler, U., Greim, H., Hallier, E., Letzel, S., Mersch-Sundermann, V.H., Neuberger, M., Nowak, D., Rudiger, H.W., 2004. Über das Biological Monitoring, den Unwillen Gesundheitsrisiken rational abzuschätzen und die Lust an radikalen Maßnahmen. *Umweltmed. Forsch. Prax.* 9, 61-64.

3. Hays SM, Becker RA, Leung HW, Aylward LL, Pyatt DW. 2007. Biomonitoring equivalents: A screening approach for interpreting biomonitoring results from a public health risk perspective. *Regulatory Toxicol & Pharmacol.* 47: 96-109.

4. Angerer, J., Bird, M.G., Burke, T.A., Doerrer, N.G., Needham, L., Robison, S.H., Sheldon, L., Zenick, H., 2006. Meeting Report: Strategic Biomonitoring Initiatives: Moving the Science Forward. *Toxicol. Sci.* published online June 19th, 2006, doi:10.1093/toxsci/kfl042.

5. Kommission Human-Biomonitoring des Umweltbundesamtes, 1996. Human-biomonitoring: Definitionen, Möglichkeiten und Voraussetzungen. *Bundesgesundheitsbl* 39, 213-214.

6. CDC (Centers for Disease Control and Prevention). 2015. Fourth National Report on Human Exposure to Environmental Chemicals, Update Tables. Washington, DC: CDC.

7. Health Canada. 2013. Second Report on Human Biomonitoring of Environmental Chemicals in Canada: Results of the Canadian Health Measures Survey Cycle 2 (2009-2011).

8. 박충희, 유승도. 2014. 국민환경보건기초조사의 현황 및 전망. *한국환경보건학회지.* 40(1): 1-9.

9. Park CH, Hwang MY, Kim HJ, Ryu SD, Lee KJ, Choi KH, Paek DM. 2016. Early snapshot on exposure to environmental chemicals among Korea adults- results of the first Korean National Environmental Health Survey (2009-2011). *Int J. Hyg Environ Health.* 219: 398-404.

10. Masih A, Lall AS, Taneja A, Singhvi R. 2017. Exposure profiles, seasonal variation and health risk assessment of BTEX in indoor air of homes at different microenvironment of a terai province of northern India. *Chemosphere.* 176: 8-17.

11. Smith MN, Workman T, McDonald KM, et al. Seasonal and occupational trends of five organophosphate pesticides in house dust. *J Expo Sci Environ Epidemiol.* 2016; 27:372-378.

12. Weiss L, Arbuckle TE, Fisher M, et al. Temporal

- variability and sources of triclosan exposure in pregnancy. *Int J Hyg Environ Health*. 2015; 218: 507-513.
13. Wu L, Zhou X, Zhao D, Feng T, Zhou J, Wang TSJ, Wang C. 2017. Seasonal variation and exposure risk assessment of pesticide residues in vegetables from Xinjiang Uygur Autonomous Region of China during 2010-2014. *J Food Composition and Analysis*. 58: 1-9.
 14. Behall KM, Scolfield DJ, Hallfrisch JG, Kelsay JL, Reiser S. 1984. Seasonal variation in plasma glucose and hormone levels in adult men and women. *Am J Clin Nutri*. 1352-1356.
 15. Lips P, Hackeng L, Jongen MJM, Van Ginkel FC, Netelenbos JC. 1983. Seasonal variation in serum concentrations of parathyroid hormone in elderly people. *J Clin Endocrinol and Metabol*. 204-206.
 16. Roberto S, Giancarlo C, Michele B, Guido G, Luisa SL, Alberto Z, Guiseppe O. 1998. Seasonal variations in home and ambulatory blood pressure in the PAMELA population.
 17. Romano ME, Kalloo G, Etzel T, Braun JM. 2017. Seasonal variation in exposure to endocrine-disrupting chemicals. *Epidemiology*. 28(5): e42-e43.
 18. Choi WH, Kim SJ, Baek YW, Choi KH, Lee KJ, Kim SK, Yu SD, Choi KH. 2017. Exposure to environmental chemicals among Korean adults-updates from the second Korean National Environmental Health Survey (2012-2014). *Int. J. Hyg. Environ. Health* 220: 29-35.
 19. Park CH, Choi WH, Hwang MY, Lee YM, Kim SJ, Ryu SD, Lee IA, Paek DM, Choi KH. 2017. Association between urinary phthalate metabolites and bisphenol A levels, and thyroid hormones among Korean adults population-Korean National Environmental Health Survey (KoNEHS) 2012-2014. *Sci. Total Environ*. 584-585: 950-957.
 20. Barr DB, Wilder LC, Caudill SP, Gonzalez AJ, Needham LL, Pirkle JL. 2005. Urinary creatinine concentrations in the U.S. population: implication for urinary biologic monitoring measurements. *Environ Health Perspect*. 113: 192-200.
 21. Lakind JS, Sobus JR, Goodman M, Barr DB, Fürst P, Albertini RJ, Arbuckle TE, Schoeters G, Tan YM, Teeguarden J, Tornero-Velez R, Weisel CP. 2014. A proposal for assessing study quality: Biomonitoring, Environmental Epidemiology, and Short-lived Chemicals (BEES-C) instrument. *Environ Int*. 73, 195-207.
 22. 질병관리본부. 2017. 계절에 따른 식품 및 영양소 섭취 현황. 주간 건강과 질병. 제10권. 49호: 1333-1337.
 23. Engstrom A, Michaelsson K, Suwazono Y, Wolk A, Vahter M, Akesson A. 2011. Long-term cadmium exposure and the association with bone mineral density and fractures in a population-based study among women. *J Bone & Mineral Reseach*. 26(3): 486-495.
 24. 강공연, 김남송, 신은상. 2011. 익산지역 대기 중 PM10과 PM2.5의 계절별 특성. *한국환경보건학회지* 37: 29-43.
 25. Lee BK and Hieu NT. 2011. Seasonal variation and sources of heavy metals in atmospheric aerosols in a residential area of Ulsan, Korea. *Aerosol and air Quality Research*. 11: 679-688.
 26. Ho KF, Lee SC, Guo H, Tsai WY. 2004. Seasonal and diurnal variations of volatile organic compounds (VOCs) in the atmosphere of Hong Kong. *Sci of Tot Environ*. 332: 155-166.
 27. Erythropel HC, Maric M, Nicell JA, Leask RL, Yargeau V. 2014. Leaching of the plasticizer di(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP) from plastic containers and the question of human exposure. *Appl Microbiol Biotechnol*. 98: 9967-9981.
 28. Heudorf U, Mersch-Sundermann V, Angerer J. 2007. Phthalate: Toxicology and exposure. *Int J. Hyg Environ Health*. 210: 623-634.
 29. lee JY, Shin HJ, Bae SY, Kim YP, Kang CH. 2008. Seasonal variation of particulate size distributions of PAHs at Seoul, Korea. *Air Qual Atmos Health*. 1: 57-68.
 30. Martorell I, Nieto A, Nadia M, Perello G, Marce RM, Domingo JL. 2012. Human exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) using data from a duplicate diet study in Catalonia, Spain. *Food and Chem Toxicol*. 50(11): 4103-4108.
 31. Imai K, Yoshinaga J, Yoshikane M, Shiraishi H, Mieno MN, Yoshiike M, Nozawa S, Iwamoto T. 2014. Pyrethroid insecticide exposure and semen quality of young Japanese men. *Reprod Toxicol* 43:38-44. doi:10.1016/j.reprotox.2013.10.010
 32. Saillenfait AM, Ndiaye D, Sabaté JP. 2015. Pyrethroids: Exposure and health effects- An update. *Int J Hyg Environ Health*. 218: 281-292.
 33. Hays SM, Aylward L, Lakind JS. 2007. Introduction to the Biomonitoring Equivalents pilot projects: Development of quidlines for the derivation and communication of Biomonitoring Equivalents. *Regul Toxicol and Phramacol*. 47: 96-109.

<저자 정보>

박충희(환경연구원) 황문영(보건연구원),
 류정민(보건연구원), 권영민(전문위원),
 홍수연(전문위원)