

경기도내 유통 농산물 중 잔류농약의 확률론적 노출평가 연구

도영숙* · 김중범 · 강석호 · 김난영 · 엄미나 · 윤미혜

경기도보건환경연구원 보건연구기획팀

Probabilistic Exposure Assessment of Pesticide Residues in Agricultural Products in Gyeonggi-do

Young-Sook Do*, Jung-Boem Kim, Suk-Ho Kang, Nan-Young Kim, Mi-Na Eom and Mi-Hye Yoon

Health Research & Planning Team, Gyeonggi-do Institute of Health & Environment

(Received on April 18, 2013. Revised on May 10, 2013. Accepted on May 21, 2013)

Abstract A probabilistic exposure assessment was performed on the monitoring data of pesticides were assessed in agricultural products in Gyeonggi-do from 2006 to 2010. Chlorothalonil, chlorpyrifos, dicofol, endosulfan, EPN, ethoprophos, fenitrothion, methidathion, phenthoate and tebuirimfos were assessed. For this assessment, we used Monte Carlo simulation software and the distribution of concentration and intake were assumed to lognormal distribution by inputting mean and standard deviation. The hazard index (HI, %ADI) of average value and the 95th percentile based on a probabilistic method were usually lower than those by a deterministic one. For the whole population, when non-detects data were assigned 0 mg/kg, HI of the average value and the 95th percentile showed 0.05~0.70% and 0.11~1.94%, respectively. When non-detects data were assigned 0.005 mg/kg, HI of the average value and the 95th percentile were 0.41~4.42% and 0.98~13.81%. For only consumers, when non-detects data were assigned 0 mg/kg, HI of the average value and the 95th percentile were 1.24~10.16% and 3.72~33.81%, respectively. When non-detects data were assigned 0.005 mg/kg, HI of the average value and the 95th percentile were 3.43~18.26% and 9.45~54.99%, respectively. Methidathion had highest values when both of 0 and 0.005 were assigned to non-detects data for consumers only. This study showed that agricultural products in Gyeonggi-do were safe because they had less than 100 of HI (%ADI) based on probabilistic exposure assessment.

Key words Lognormal distribution, Pesticide residues, Probabilistic exposure assessment

서 론

FAO와 WHO는 1990년대 초부터 식품안전에 관한 의사 결정 및 규격설정과 관련하여 위해평가에 근거하도록 하고 있다(FAO/WHO, 2006). 위해평가는 위험확인, 위험결정, 노출평가와 위해도결정의 일련의 과학적 접근과정을 통해 수행된다(FAO/WHO, 2009). 노출평가는 오염물질이 잔류하는 식품을 섭취하므로써 최종적으로 섭취되는 오염물질의 양을 추정하는 과정으로 화학물질의 노출평가방법에는 오염물질과 식품섭취량의 평균이나 고백분위수와 같은 특정 부

분의 값을 활용하는 결정론적 방법(point)과 몬테 카를로 시뮬레이션과 같은 컴퓨터 프로그램을 통해 농도분포와 섭취 분포 모델을 활용하여 확률론적(probabilistic)으로 위해도를 추정하는 방법이 있다. 결정론적인 평가방법에 비해 확률론적 평가방법은 시간과 비용이 많이 드나 입력 인자와 예측 값에 대하여 분포도를 보여주고 민감도 분석과 시나리오 분석 등을 통해 다양한 결과를 추정하여 의사결정의 폭을 넓게 한다(Ferrier 등, 2002; Hamilton 등 2004).

위해평가에 대한 WHO의 가이드라인은 규정전(pre-regulatory), 규정후(post-regulatory) 식이노출 평가로 구분하고 목적에 따라 단계적 접근법을 적용하도록 권고하고 있다. 확률론적 방법은 경제적인 측면을 고려하여 보다 정교한 최종 단계, 급성위해평가와 누적위해평가의 경우 활용하도록

*Corresponding author

Tel: +82-31-250-2581, Fax: +82-31-250-2588

E-mail: dys001@gg.go.kr

하고 있다(EFSA, 2011).

화학적 위해물질인 농산물 중 잔류농약의 위해평가를 위해 이미 미국, 유럽 등지에서는 식품섭취량, 농도 등을 데이터베이스화하여 관리하고 노출평가에 적용할 수 있는 모델을 구축하여 활용하고 있다(Lee 등 2010; Kim 등 2010). 우리나라도 잔류농약의 노출평가를 위한 데이터베이스와 모델 확립을 위한 국가용역사업이 진행 중이다. 우리나라 농산물 중 잔류농약에 대한 결정론적 평가가 일부 시도되고 있으나 평가자마다 체중 적용, 섭취량 산출 근거 등이 달라 이를 비교 평가하기 어렵다(Do 등, 2010; Lee 등, 2002; Lee 등, 2009; Han 등, 2003). 잔류농약에 대한 확률론적 접근을 통한 노출평가도 최근 장 등(2010)과 백 등(2010)의 문헌으로 제한된 실정이다.

따라서 본 연구는 2006년부터 2010년까지 5년간 누적된 경기도내 유통 농산물의 잔류농약 모니터링 데이터에 대하여 확률론적 평가방법을 적용하여 위해도를 예측하고 결정론적 평가결과와 비교하고 위해요인을 보다 폭 넓게 분석하여 잔류농약 노출평가방법 구축에 기초자료로 활용하고자 하였다.

재료 및 방법

재료

잔류농약 농도 데이터는 2006년부터 2010년까지 경기도내에서 유통되는 농산물의 잔류농약 모니터링 결과를 활용하였다(Do 등, 2012). 노출평가 대상 농약성분은 결정론적 위해평가 결과 위해도가 상위로 판단되는 chlorothalonil, chlorpyrifos, dicofol, endosulfan, EPN, ethoprophos, fenitrothion, methidathion, phenthoate와 tebuipirimfos 등 10종을 선정하였다. 10종의 농약을 검사한 농산물 85품목에 대한 위해도를 산출하여 농약별로 합산하였다. 잔류농약 농도 데이터 중 불검출 데이터는 LOD = 0 mg/kg을 적용한 경우와 LOD = 0.005 mg/kg을 적용한 두 가지로 시물레이션하였다(Lee 등, 2009; Claeys 등, 2007).

각 농산물의 전국민(비섭취자 포함)과 섭취자만의 1인1일 평균섭취량은 질병관리본부에서 실시하는 국민건강영양조사 제 3기 중 2009년 자료(KCDC, 2009)를 SPSS 프로그램을 활용하여 산출하였다. 국민건강영양조사 자료 중 식품코드는 대체로 원재료를 포괄적으로 산출한 3차 코드 자료를 활용하였다. 3차 코드 중 배추, 무, 오이, 갓, 고들빼기, 파 등은 배추(백김치, 배추김치), 무뿌리(단무지, 깍두기김치, 동치미), 무잎(열무, 무청, 무청김치, 열무김치, 총각김치), 갓(갓, 갓김치), 쌀(백미, 현미, 찰쌀)과 호박(애호박, 늙은호박, 단호박)등과 같이 김치류와 유사 식품을 포함하였고, 이들의 원재료 비율과 가공요인은 섭취량 산출에 고려하지 않았다.

Table 1. Acceptable Daily Index values used for the chronic risk assessment

Pesticide	ADI (mg/kgbw/day)	Pesticide	ADI (mg/kgbw/day)
Chlorothalonil	0.02	Ethoprophos	0.0004
Chlorpyrifos	0.01	Fenitrothion	0.005
Dicofol	0.002	Methidathion	0.001
Endosulfan	0.006	Phenthoate	0.003
EPN	0.0014	Tebuipirimfos	0.0002

Table 2. Simulation conditions

Run preferences	Condition
Trials	200,000, Confidence level 95%
Sampling method	Monte Carlo
Speed	Normal
Statistics	Probability below a value

국민평균체중은 잔류농약허용기준 설정시 사용되는 55kg을 적용하였다(FAO/WHO, 2009; Do 등 2010).

위해도 산출을 위해 검출된 농약별 ADI는 2011년 식품의약품안전청 잔류농약 데이터베이스를 참고하였으며 Table 1과 같았다(KFDA, 2011).

노출평가 방법

결정론적 노출평가방법은 2011 위해평가 지침의 의도적 사용물질로 만성독성인 오염물질에 대한 수식을 적용하였다.

$$\text{일일추정섭취량(Estimated Daily Intake, mg/kgbw/day)} = \sum_{i=1}^n \frac{\text{평균 잔류량(mg/kg)} \times \text{식품일일섭취량(kg/day)}}{\text{평균체중(kg)}}$$

$$\text{위해도(Hazard Index, \%Acceptable Daily Index)} = \frac{\text{EDI (mg/kgbw/day)} \times 100}{\text{ADI (mg/kgbw/day)}}$$

확률론적 노출평가를 위해 Crystal ball Ver.11.1(Oracle Co., USA)프로그램을 이용하였으며 시물레이션 조건은 Table 2와 같았다.

결과 및 고찰

시물레이션 조건

시물레이션 결과 예측값 분포에서 꼬리부분의 변동성이 증가하여 고백분위수의 불확실성이 커지므로 이를 최소화하기 위해서는 반복시행을 통해 충분한 규모의 시료를 확보해야 한다. 시물레이션 실행 횟수를 결정하기 위하여 EPN과 methidathion과 tebuipirimfos 등 3성분에 대하여 10,000번,

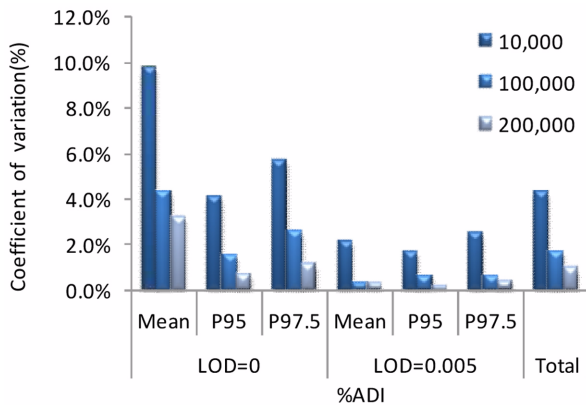


Fig. 1. Coefficient of variation by the number of iterations.

100,000번, 200,000번씩 5회 반복한 결과는 Fig. 1과 같았다.

변동계수는 반복횟수가 많을수록 감소하였고, 불검출 농도에 LOD = 0을 적용한 경우가 LOD = 0.005를 적용했을 때보다 더 높게 나타났다. 본 연구에서는 컴퓨터 처리용량을 고려하여 전체 평균 변동계수가 1.0%로 가장 낮게 나타난 20만번을 반복실행 횟수로 결정하였다.

분포가정

확률론적 노출평가에서 입력변수의 가정 분포는 예측값 분포에 가장 큰 영향을 미치는 불확실성을 내포하고 있다 (Ferrier 등, 2006). 적절한 분포를 찾기 위하여 잔류농약 농도 데이터에 대한 분포적합(fitting)을 시행한 결과 logistic 분포가 65.7%로 가장 많았고, 다음으로 min extreme, betapert, lognormal순이었다(Table 3). 식품섭취량데이터에 대한 분포적합 결과는 전국민의 경우 logistic 분포가 87.5%로 가장 많았고, max exteme, gamma 등의 순이었다. 섭취자군만을 대상으로 한 경우는 lognormal 분포가 65.1%로 가장 많았다(Table 4).

분포적합 결과에서 통계량 Anderson-Darling 값이 작고, p value가 0.05보다 큰 값을 선택해야 하나 대부분 0.05이하로 나타나 분포적합 결과를 신뢰할 수 없었다. 농도데이터에 불검출인 0이 대부분이고 섭취량 데이터에도 전국민 섭취량의 경우 비섭취자수 비율이 높기 때문인 것으로 판단된다.

식품섭취량 데이터의 분포 적용에 관한 문헌을 보면 대체로 lognormal 분포를 적용하고 있다(Paik 등, 2010; Voet 등, 2003; Gilsenan 등, 2003). 본 연구에서도 섭취자군만을 대상으로 한 경우는 fitting 결과에서 lognormal 분포가 65%로 가장 많았다. lognormal 분포는 오른쪽으로 꼬리가 긴(왜도 > 0) 분포로 0보다 작은 값을 가질 수 없고, 데이터가 하한값 근처에 몰려있는 분포로 모수(평균과 표준편차)입력으로 분포를 가정할 수 있다. 섭취량 분포에 대하여 분포적합에 의한 lognormal 분포는 관측치보다 고백분위에서 과대평가될 수 있어(Gilsenan 등, 2003) 본 연구에서는 데이터의 평

Table 3. Distribution fitting results by anderson-darling statistic for the pesticide residue concentration (Ignore p value)

Distribution type	Rate (%)
Lack of data	7.5
Beta pert	12.6
Logistic	65.7
Lognormal	0.8
Min extreme	13.4
Total	100.0

Table 4. Distribution fitting results by anderson-darling statistic for the commerdity intake (Ignore p value)

Distribution type	Total population (%)	Consumers only (%)
Beta	0.0	1.6
Exponential	0.0	7.9
Gamma	4.2	15.9
Logistic	87.5	3.2
Lognormal	1.4	65.1
Max Extreme	5.6	1.6
Normal	1.4	0.0
Weibull	0.0	4.8
Total	100.0	100.0

Table 5. Sinaros by distribution types

No	Concentration distribution		Intake distribution	
	LOD = 0	LOD = 0.005	General population	Consumer only
1	Beta	Beta	Log ¹⁾	Log
2	Beta	Beta	Log fit ²⁾	Log fit
3	Best fit	Best fit	Best fit	Best fit
4	Beta	Beta	Beta	Beta
5	Log	Log	Log	Log

¹⁾ Log : lognormal distribution by input value, ²⁾ Log fit : lognormal distribution by fitting

균과 표준편차 입력에 의한 lognormal 분포를 적용하였다.

잔류농약 농도 데이터에 대해 Hemilton 등(2000)은 급성 평가를 위한 포장잔류시험에서 개별단위 과일 농도는 보다 많은 증거가 필요하지만 lognormal 분포를 따른다고 하였다. 일부 문헌에서는 오염물질 농도 분포에 beta분포가 lognormal 분포 보다 유연하고 일관성 있다고 하여 이를 적용하기도 하였다(Choi 등, 2012; Flynn, 2004). 따라서 입력 데이터의 적절한 분포를 결정하기 위해 methidathion에 대하여 농도와 섭취량 입력분포를 5가지로 하여 Table 5와 같이 시뮬레이션하였다.

Table 6. Mean exposure value of methidathion by different distribution types

Scenario	General population (%ADI)						Consumer only (%ADI)					
	LOD = 0			LOD = 0.005			LOD = 0			LOD = 0.005		
	D ¹⁾	P ²⁾	(%) ³⁾	D	P	(%)	D	P	(%)	D	P	(%)
1	0.76	0.79	104.0	2.55	2.48	97.2	10.78	10.66	98.9	20.83	21.08	101.2
2	0.76	13.17	1741.3	2.55	140.49	5509.9	10.78	10.39	96.4	20.83	20.18	96.9
3	0.76	6.54	865.0	2.55	4.64	181.8	10.78	61.57	571.3	20.83	62.50	300.0
4	0.76	0.68	89.6	2.55	2.47	96.9	10.78	9.23	85.6	20.83	20.30	97.5
5	0.76	0.70	92.6	2.55	2.37	92.9	10.78	10.16	94.3	20.83	18.26	87.6

¹⁾D : deterministic hazard index, ²⁾P : probabilistic hazard index, ³⁾(%) : P/D*100

Table 7. 95th percentile exposure value of methidathion by different distribution types

Scenario	General population (%ADI)						Consumer only (%ADI)					
	LOD = 0			LOD = 0.005			LOD = 0			LOD = 0.005		
	D ¹⁾	P ²⁾	(%) ³⁾	D	P	(%)	D	P	(%)	D	P	(%)
1	3.90	11.86	304.5	11.47	14.41	125.7	34.70	140.75	405.6	65.30	151.96	232.7
2	3.90	32.06	823.1	11.47	103.07	898.6	34.70	136.41	393.1	65.30	148.30	227.1
3	3.90	15.80	405.7	11.47	9.87	86.1	34.70	147.23	424.3	65.30	148.10	226.8
4	3.90	35.12	901.8	11.47	37.62	328.0	34.70	116.76	336.5	65.30	146.41	224.2
5	3.90	1.94	49.8	11.47	6.59	57.5	34.70	33.81	97.4	65.30	54.99	84.2

¹⁾D : deterministic hazard index, ²⁾P : probabilistic hazard index, ³⁾(%) : P/D*100

Table 8. Comparison of deterministic approach and probabilistic approach for total population

Pesticide	LOD = 0						LOD = 0.005					
	Mean			P95			Mean			P95		
	D ¹⁾	P ²⁾	(%) ³⁾	D	P	(%)	D	P	(%)	D	P	(%)
Chlorothalonil	0.38	0.35	92.6	1.677	1.05	62.4	0.53	0.50	92.9	2.32	1.42	61.3
Chlorpyrifos	0.11	0.09	84.5	0.350	0.30	84.5	0.44	0.41	95.2	1.71	0.98	57.2
Dicofol	0.78	0.68	87.3	4.976	1.83	36.8	1.41	1.26	89.0	7.67	3.71	48.4
Endosulfan	0.41	0.38	91.1	1.542	1.17	75.9	0.89	0.84	94.3	3.42	2.36	69.1
EPN	0.33	0.29	88.0	1.545	0.89	57.5	3.13	3.05	97.4	10.76	6.15	57.1
Ethoprophos	0.08	0.07	84.0	0.318	0.19	60.3	1.28	1.25	97.6	4.82	3.58	74.3
Fenitrothion	0.18	0.15	82.6	1.088	0.51	47.2	0.70	0.65	93.3	3.42	1.59	46.3
Methidathion	0.76	0.70	92.3	3.895	1.94	49.7	2.55	2.37	93.0	11.47	6.59	57.5
Phenthoate	0.18	0.15	82.8	1.056	0.49	46.7	0.76	0.71	93.3	3.42	1.81	52.8
Tebupirimfos	0.06	0.05	87.5	0.180	0.11	59.0	4.43	4.42	99.7	16.23	13.81	85.1

¹⁾Deterministic hazard index (%ADI), ²⁾Probabilistic hazard index (%ADI), ³⁾(%) = P/D*100

시뮬레이션 결과는 Table 6, 7과 같았다. 위해도 예측값의 평균은 농도 데이터가 beta 분포인 경우와 섭취량이 lognormal 분포를 적용했을 때 결정론적 데이터와 가장 유사하게 나타났다. 그러나 95백분위수에서는 200% 이상 과대 평가되었다. 이에 비해 모수입력을 통한 lognormal 분포로 농도와 섭취량 분포를 가정하였을 때 평균과 고백분위수에서 다

른 시나리오 보다 결정론적 위해도와 비슷한 결과를 보였다.

결정론적 평가와 확률론적 평가의 비교

시뮬레이션을 통한 확률론적 노출평가 결과와 결정론적 노출평가 결과는 Table 8, 9와 같았다. 섭취기준을 전국민

Table 9. Comparison of deterministic approach and probabilistic approach for consumers only

Pesticide	LOD = 0						LOD = 0.005					
	Mean			P95			Mean			P95		
	D ¹⁾	P ²⁾	(%) ³⁾	D	P	(%)	D	P	(%)	D	P	(%)
Chlorothalonil	2.71	2.35	86.7	9.29	7.18	77.2	3.87	3.43	88.5	12.84	9.86	76.8
Chlorpyrifos	2.30	1.83	79.7	5.39	5.05	93.7	5.36	4.77	89.0	14.33	9.45	65.9
Dicofol	6.35	5.69	89.5	17.99	20.36	113.2	8.50	7.62	89.7	24.12	25.81	107.0
Endosulfan	8.10	7.03	86.7	22.18	15.50	69.9	12.53	11.40	91.0	35.59	21.06	59.2
EPN	3.69	3.23	87.5	10.83	10.54	97.3	14.34	13.59	94.8	41.23	30.25	73.4
Ethoprophos	2.85	2.20	77.1	10.28	7.51	73.1	14.81	13.63	92.0	47.70	26.58	55.7
Fenitrothion	2.09	1.78	85.2	6.07	6.49	107.0	5.17	4.69	90.7	14.75	11.59	78.6
Methidathion	10.78	10.16	94.2	34.70	33.81	97.4	20.83	18.26	87.7	65.30	54.99	84.2
Phenthoate	10.50	7.95	75.7	18.51	24.33	131.5	14.27	11.47	80.4	29.07	28.99	99.8
Tebupirimfos	1.52	1.24	81.6	4.37	3.72	85.1	14.97	14.15	94.5	40.62	36.70	90.4

¹⁾Deterministic hazard index (%ADI), ²⁾Probabilistic hazard index (%ADI), ³⁾(%) = P/D*100

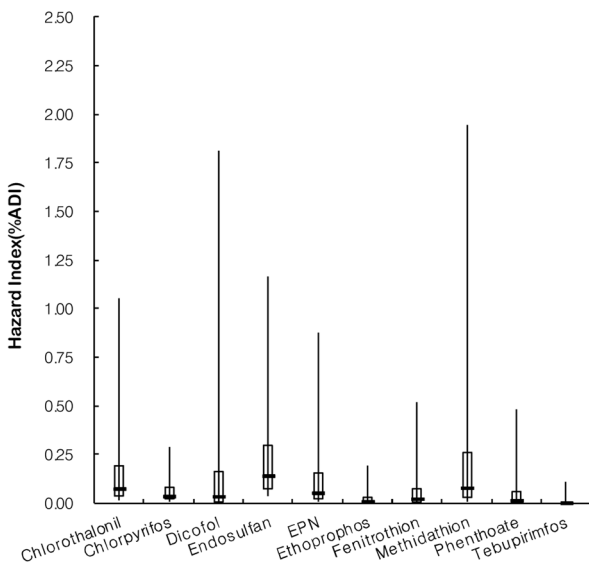


Fig. 2. Hazard index (%ADI) of 5th, 25th, 50th, 75th and 95th percentile for total population (LOD = 0).

평균으로 하고 LOD = 0을 적용한 경우 확률론적 평균 위해도(%ADI)는 0.05~0.70으로 methidathion이 가장 높았고 결정론적 위해도에 비해 82.6~92.6%로 낮게 나타났다. 고백분위수(95백분위수)에서는 0.11~1.94로 비율은 36.8~84.5%로 낮게 나타났다. LOD = 0.005를 적용한 경우는 농약별 평균 위해도는 0.41~4.42로 tebupirimfos가 가장 높았고, 결정론적 위해도에 대한 비율이 89.0~99.7%로 비슷하거나 낮게 나타났다. 고백분위수(95백분위수)의 위해도는 0.98~13.81로 비율은 46.3~85.1%로 낮게 나타났다. 섭취자만을 대상으로 하고 LOD = 0을 적용한 경우는 1.24~10.16으로 methidathion이 가장 높게 나타났고 비율은 75.7%~94.2%로 낮게 나타났다. 95백분위수에서의 위해도는 3.72~33.81로 비율은

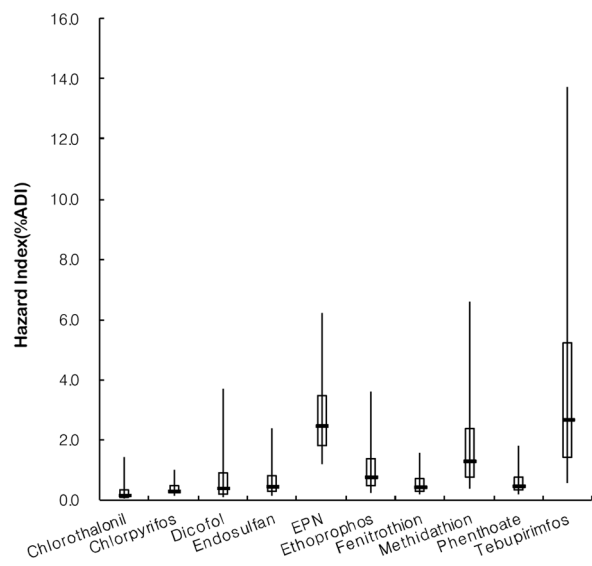


Fig. 3. Hazard index (%ADI) of 5th, 25th, 50th, 75th and 95th percentile for total population (LOD = 0.005).

69.9%~131.5%로 농약별로 높거나 낮게 나타났다. LOD = 0.005를 적용한 경우 평균 위해도는 3.43~18.26으로 methidathion이 가장 높게 나타났고, 비율은 80.4%~94.8%로 낮게 나타났다. 95백분위수는 9.45~54.99로 비율은 55.7%~107.0%로 나타났다. Methidathion은 유기인계 살충제로 감귤, 사과, 오이, 가지 등의 진딧물과 각지 벌레 등에 적용되는 고독성 농약으로 적용대상 작물 이외에는 사용이 금지되었으나(KCPA, 2011) 상추, 깻잎, 시금치 등 엽채류와 고추, 호박, 복숭아 등에서도 검출되었다. 그 외 농약성분들도 적용작물 이외 사용 불가한 작물들에서 다양하게 검출되고 있어 농약 사용자의 주의가 요구된다.

5, 25, 50, 75, 95백분위수별 위해도는 Fig 2, 3, 4, 5와 같

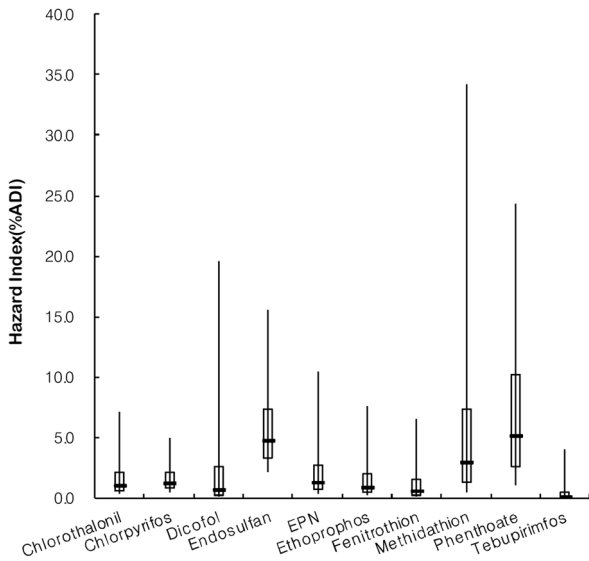


Fig. 4. Hazard index (%ADI) of 5th, 25th, 50th, 75th and 95th percentile for consumers only (LOD = 0).

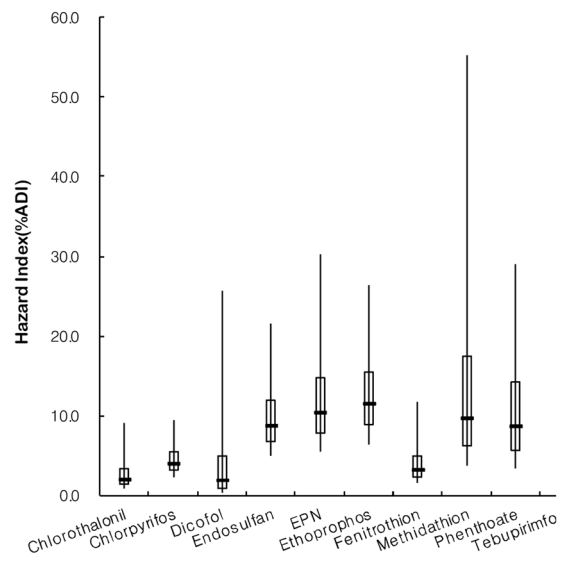


Fig. 5. Hazard index (%ADI) of 5th, 25th, 50th, 75th and 95th percentile for consumers only (LOD = 0.005).

Table 10. Contribution(%) of commodity for the total hazard index (%ADI)

Pesticide	Commodity (%)	
	Total population, LOD = 0	Consumers only, LOD = 0
Chlorothalonil	korean cabbage (44.7), spinach (10.1), cucumber (10.1), radish leaf (9.8), other (25.3)	celery (13.5), chard (12.3), spinach (10.4), others (63.8)
Chlorpyrifos	orange (23.2), mandarin (20.4), pepper powder (13.7), others (42.7)	orange (37.9), spergularia marina (11.0), danggui leaf (9.8), others (41.3)
Dicofol	mandarin (93.2), others (6.8)	mandarin (92.3), others (7.7)
Endosulfan	korean cabbage (31.6), welsh onion (11.7), spinach (7.3), others (49.4)	kumquat (17.8), turnip (10.8), chard (9.8), others (61.6)
EPN	mandarin (46.7), pepper(14.7), others(38.6)	mandarin (34.4), chwinamul (23.4), quince (10.0), other (32.3)
Ethoprophos	perilla leaf (36.1), pepper (31.7), others (32.2)	butterbur (49.6), wild rocambol (14.7), others (35.7)
Fenitrothion	mandarin (81.1), others (18.9)	mandarin (58.9), chwinamul (17.9), chamnamol (13.4), others (9.8)
Methidathion	mandarin (72.4), peach (11.9), others (15.7)	mandarin (42.3), peach (23.1), chamnamul (11.8), others (22.8)
Phenthoate	mandarin (88.3), others (11.7)	kumquat (72.5), mandarin (13.8), kiwi fruit (12.4), others (1.3)
Tebupirimfos	korean cabbage (88.1), chamnamol (9.6), others (2.3)	chamnamol (76.3), chard (18.4), others (5.3)

았다. LOD 적용에 따라 위해도와 분포도가 상당히 다르게 나타났다. 대체로 왼쪽으로 치우치고 오른쪽으로 꼬리가 길게 나타났다. Methidathion, dicofol, tebupirimpos, EPN, endosulfan 등이 위해도가 높고 분포도도 다른 농약성분들보다 넓게 나타났다. Dicofol 수화제와 유제는 감귤에 응애류의 살충제로 유통되다가 2010년 12월에 등록 취소되었다. 그 외 methidathion 유제, EPN 유제, endosulfan 유제 등을 비롯한 고독성 농약 9종은 2011년 12월에 등록 취소되었다. 따라서 고독성 농약으로 인한 노출 위해도는 앞으로 감소할 것으로 예상된다. 그러나 다양한 경로를 통한 무등록 농

약의 사용과 약효보증기간 동안은 사용이 가능하여 앞으로 지속적인 모니터링이 요구된다.

경기도내 유통 농산물 중 잔류농약의 전국민과 섭취자군에 대한 확률론적 만성식이 노출평가결과 평균 및 95백분위수에서도 모두 위해도가 100을 넘지 않아 인체에 안전한 것으로 나타났다.

확률론적 노출평가결과는 결정론적 노출평가에 비해 평균 위해도는 낮거나 비슷하였고, 고백분위수로 갈수록 농약성분별로 높은 경우도 있었으나 대체로 낮게 나타났다. 평균 위해도를 보기 위해서는 결정론적 평가로도 충분하겠으나 고

Table 11. The two most sensitive factor for the total hazard index(%ADI)

Pesticide	Commodity (%)	
	Total population, LOD = 0	Consumers only, LOD = 0
Chlorothalonil	cabbage ¹⁾ con ²⁾ . (42.1), cucumber con. (8.7)	celery con. (16.1), chard con. (11.0), spinach con. (8.6)
Chlorpyrifos	orange intake (16.2), pepper powder con. (15.6)	orange con. (47.0), orange intake (12.8)
Dicofol	mandarin con. (58.7%), mandarin intake (36.5)	mandarin con. (82.8), mandarin intake (12.3)
Endosulfan	cabbage con. (37.6), welsh onion con. (11.2)	kumquat con. (46.2), butterbur con. (14.8)
EPN	mandarin con. (34.9), mandarin intake (22.6)	mandarin con. (36.4), chwinamul.con. (17.5)
Ethoprophos	pepper.con. (32.0), perilla leaf (20.2)	butterbur con. (55.1), wild rocambol con. (13.4)
Fenitrothion	mandarin.con. (45.1), mandarin intake (43.5)	mandarin con. (63.4), mandarin intake (14.3)
Methidathion	mandarin con. (47.1), mandarin intake (28.8)	mandarin con. (42.8), peach con. (21.4)
Phenthoate	mandarin con. (49.5), mandarin intake (44.9)	kumquat con. (77.7), kumquat intake (8.9)
Tebupirimfos	cabbage con. (76.0), cabbage intake (6.9)	chamnamul con. (68.5), chard con. (20.9)

¹⁾cabbage : korean cabbage, ²⁾con. : pesticide concentration

백분위수와 분포 전체를 파악하기 위해서는 확률론적 노출 평가가 병행되어야 할 것으로 판단된다.

품목별 기여도 및 민감도 분석

농약별 확률론적 식이노출평가 결과 총 위해도에 기여가 큰 주요 농산물은 Table 10과 같았다. 전국민에서 chlorothalonil, endosulfan, tebupirimfos는 배추가 주요 기여 품목 이었고, chlorpyrifos, dicofol, EPN, fenitrothion, methidathion, phenthoate 등은 밀감이 주요 기여 품목이었다. 배추와 밀감은 전국민 평균 섭취량이 각각 88.84g, 30.47g으로 다른 농산물에 비해 높기 때문인 것으로 판단된다. 섭취자군에서는 dicofol, EPN, fenitrothion, methidathion등에서 밀감 기여도가 높았고, chlorothalonil은 셀러리, chlorpyrifos는 오렌지, endosulfan과 phenthoate는 금귤, ethoprophos는 머위, tebupirimfos는 참나물이 가장 높았다.

LOD = 0을 적용한 노출평가에서 민감도 분석 결과는 Table 11과 같았다. 전국민의 Chlorpyrifos의 경우를 제외하고 전국민과 섭취자군 모두에서 대체로 기여도가 큰 농산물의 섭취량 보다는 잔류농약농도의 변동성이 노출량에 민감한 것으로 나타났다.

결 론

2006년부터 2010년까지 경기도내 유통 농산물의 잔류농약 검사결과에 대하여 결정론적 노출평가를 실시하고, 평가 결과 위해도가 상위인 chlorothalonil, chlorpyrifos, dicofol, endosulfan, EPN, ethoprophos, fenitrothion, methidathion, phenthoate, tebupirimfos 등 10종의 농약에 대하여 몬테카를로 시뮬레이션을 이용한 확률론적 만성식이노출평가를 실시하였다.

시뮬레이션을 위한 섭취량과 농도의 분포가정은 모수(평

균, 표준편차)입력을 통한 lognormal 분포를 적용하였다. 확률론적 노출평가결과는 결정론적 노출평가에 비해 평균과 95백분위수에서 대체로 낮게 나타나 결정론적 위해평가 결과만으로는 과대평가가 우려 되었다. 위해도(%ADI)는 전국민 섭취량에 LOD = 0을 적용한 결과 평균과 95백분위수에서 각각 0.05~0.70%와 0.11~1.94%로 methidathion이 가장 높았다. 전국민 섭취량에 LOD = 0.005를 적용한 경우는 평균과 95백분위수에서 각각 0.41~4.42%와 0.98~13.81%로 tebupirimfos가 가장 높았다. 섭취자군 섭취량에 LOD = 0을 적용한 결과 평균과 95백분위수에서 각각 1.24~10.16%와 3.72~33.81%로 methidathion이 가장 높았다. LOD = 0.005를 적용한 경우 평균과 95백분위수는 각각 3.43~18.26%와 9.45~54.99%로 methidathion이 가장 높게 나타났다. 노출위해도 분포는 대체로 왼쪽으로 치우치고 오른쪽 끝으로 꼬리가 긴 형태로 Methidathion, dicofol, tebupirimfos, EPN, endosulfan 등이 다른 농약에 비해 변동성이 큰 것으로 나타났다.

농약별 민감도 분석결과 섭취자군이 전국민인 경우 대부분 농약에서 배추와 밀감이 주요 기여 품목으로 이들의 농도 변동성이 총 위해도에 가장 민감한 것으로 나타났다. 섭취자군에서는 dicofol, EPN, fenitrothion, methidathion등에서 밀감 기여도가 높았고, chlorothalonil은 셀러리, chlorpyrifos는 오렌지, endosulfan과 phenthoate는 금귤, ethoprophos는 머위, tebupirimfos는 참나물이 기여도가 큰 것으로 나타나 이들 농산물을 다량 섭취하는 섭취자는 섭취량을 줄이거나 세척을 신중하게 한다면 농약에 대한 노출량을 낮출 수 있을 것이다. 경기도내 유통 농산물에 대한 결정론적 접근과 확률론적 접근을 통한 노출평가결과 위해도가 모두 100미만으로 나타나 안전한 것으로 평가되었다.

우리나라의 잔류농약에 대한 결정론적 및 확률론적 위해 평가 구축을 위해 국가적인 데이터베이스와 모델링 및 노출

평가 방법에 대한 구체적인 기본 원칙 설정이 무엇보다 중요한 과제이며, 앞으로도 한국형 모델링을 위한 연구가 지속적으로 이루어져야 할 것이다.

Literature Cited

- Agrochemical use guide book (2011) 478. KCPA.
- Choi, H., S. K. Park and M. H. Kim (2012) Risk Assessment of Mercury through Food Intake for Korean Population. *Korean J. Food Sci. Technol.* 44(1):106~113.
- Claeys, W. L., S. De Voghel, J. F. Schmit and V. V. Pussemier (2007) Exposure assessment of the Belgian population to pesticide residues through fruit and vegetable consumption. *Food Addit. Contam.* 25(7):851~863.
- Do, J. A., H. J. Lee, Y. W. Shin, W. J. Choe, K. R. Chae, K. C. Soon and W. S. Kim (2010) Monitoring of Pesticide Residues in Domestic Agricultural Products, *J. Korean Soc. Food Sci. Nutr.*, 39(6):902~908.
- Do, Y. S., Y. B. Park and M. H. Yoon (2012) Risk assessment for pesticide residues of agricultural products in Gyeonggi-do. GIHE.
- EFSA (2011) Overview of the procedures currently used at EFSA for the assessment of dietary exposure to different chemical substances. *EFSA J* 9(12):2490.
- FAO/WHO (2006) Food safety risk analysis - A guide for national food safety authorities pp11.
- FAO/WHO (2009) ICPS EHC 240 Principle and methods for the risk assessment of chemicals in food, 6~45.
- Ferrier, H. M. Nieuwenhuijsen, A. Boobis and P. Elliott (2002) Current Knowledge and recent developments in consumer exposure assessment of pesticides: A UK perspective. *Food Addit. Contam.* 19(9):837~852.
- Ferrier, H., G. Shaw, D. M. Nieuwenhuijsen, M. B. Alan and E. Paul (2006) Assessment of uncertainty in a probabilistic model of consumer exposure to pesticide residues in food. *Food Addit. Contam.* 23(6):601~615.
- Flynn, M. R. (2004) The beta distribution-a physically consistent model for human exposure to air borne contaminants. *Stoch Envir Res and Risk Ass.* 18:306~308.
- Gilsenan, M. B., J. Lambe and M. J. Gibney(2003) Assessment of food intake input distributions for use in probabilistic exposure assessments of food additives. *Food Addit. Contam.* 20(11):1023~1033.
- Hamilton, D., A. Ambrus, R. Dieterle, A. Felsot, C. Harris, B. Petersen, K. Racke, S. S. Wong, R. Gonzalez, K. Tanaka, M. Earl, G. Roberts and R. Bhula (2004) Pesticide residues in food - acute dietary exposure - *Pest Manag. Sci.*, 60: 311~339.
- Hamilton, D. (2000) Making the best use of available residue data for acute intake assessment. *Food Addit. Contam.* 17:563~8.
- Han, K. T., K. S. Lee, E. K. Lee, K. Y. Ko, D. J. Won, J. W. Lee and S. D. Kwon (2003) Pesticide Residue Survey and Estimate Intake Amount of Vegetables in Noeun Wholesale Market, Daejeon. *Korean J. Environmental Agriculture* 22(3):210~214. *J. Korean Soc Food Sci Nutr.*, 38(12): 1779~1784.
- <http://www.rda.go.kr/board/>
<http://fse.foodnara.go.kr/residue/>
- Jang, M. R., H. K. Moon, T. R. Kim, D. H. Yuk, J. H. Kim and S. G. Park (2010) Dietary Risk Assessment for Pesticide Residues of Vegetables in Seoul, Korea, *Korean J. Nutr.* 43(4):404~412.
- Jung, J. Y., M. S. Hwang, G. G. Jung and H. J. Yoon (2011) Study for developing integrated risk assessment technology of heavy metal. 39-52. *KFDA*.
- Lee, M. G., J. H. Shim, S. H. Ko, H. R. Chung (2010) Research Trends on the Development of Scientific Evidence on the domestic Maximum Residue Limits of Pesticides. *Food Sci. Indus.* 43(2):41~66.
- Kim, C. J., J. H. Jung, S. J. Lee, Y. S. Park and S. H. Ko (2010) Calculation of food commodity intake for safety control of pesticide residues. *Food Sci. Indus.* 43(2):67~78
- KFDA (2011) Guidelines for risk assessment.
- Korea centers for disease control and prevention (2009) The fourth Korea national and nutrition examination survey.
- Lee, M. G. (2002) Cumulative risk assessment and predictive modeling of pesticide residues in foods. *Korea Sci. & Engin. Foundation. R05-2000-000-00206-0*, pp 18~20.
- Lee, H. J., W. J. Choe, J. Y. Lee, D. H. Cho, C. S. Kang and W. S. Kim (2009) Monitoring of Ergosterol Biosynthesis Inhibitor (EBI) Pesticide Residues in Commercial Agricultural Products and Risk Assessment. *J. Korean Soc. Food Sci. Nutr.* 38(12):1779~1784.
- Paik, M. K., B. J. Park, K. A. Son, J. B. Kim, S. M. Hong, W. I. Kim, G. J. Im and M. K. Hong (2010) Probabilistic Approach on Dietary Exposure Assessment of Neonicotinoid Pesticide Residues in Fruit Vegetables, *Korean J. Pest. Sci.* 14(2):110~115.
- Voet, H., P. E. Boon and J. D. van Klaveren (2003) Validation of monte carlo models for estimating pesticide intake of Dutch infants. *EC QLRT-1999-00155*, Institute of Food Safety, Netherlands, pp8.

경기도내 유통 농산물 중 잔류농약의 확률론적 노출평가 연구

도영숙* · 김종범 · 강석호 · 김난영 · 엄미나 · 윤미혜

경기도보건환경연구원 보건연구기획팀

요 약 경기도내 유통 농산물 중 잔류농약 모니터링(2006~2010)결과 chlorothalonil, chlorpyrifos, dicofol, endosulfan, EPN, ethoprophos, fenitrothion, methidathion, phenthoate와 tebupirimfos 등 농약10종에 대하여 확률론적 노출평가를 실시하였다. 몬테 카를로 시뮬레이션을 활용하였고, 농도와 섭취량의 분포는 모수인 평균과 표준편차를 입력하여 lognormal로 가정하였다. 농약별 평균과 95백분위수의 위해도는 결정론적 노출평가결과에 비해 대체로 낮게 나타났다. 위해도(%ADI)는 전국민 대상에 농도 불검출 데이터에 LOD = 0 mg/kg을 적용한 경우 평균과 95백분위수에서 각각 0.05~0.70%와 0.11~1.94%로 나타났다. LOD = 0.005 mg/kg을 적용한 경우는 평균과 95백분위수에서 각각 0.41~4.42%와 0.98~13.81%로 나타났다. 섭취자군 대상에 농도 불검출 데이터에 LOD = 0 mg/kg을 적용한 경우 평균과 95백분위수에서 각각 1.24~10.16%와 3.72~33.81%로 나타났다. LOD = 0.005 mg/kg을 적용한 경우 평균과 95백분위수는 각각 3.43~18.26%와 9.45~54.99%로 나타났다. 섭취자군에서는 LOD = 0과 LOD = 0.005를 적용한 위해도 평균과 95백분위수는 모두 methidathion이 가장 높게 나타났다. 경기도내 유통 농산물의 잔류농약에 대한 확률론적 노출위해도는 100미만으로 모두 안전한 것으로 나타났다.

색인어 잔류농약, 확률론적 노출평가, lognormal 분포