

과채류 섭취를 통한 Neonicotinoid계 농약의 노출평가에 대한 확률적 접근

백민경 · 박병준* · 손경애 · 김진배 · 홍수명 · 김원일 · 임건재 · 홍무기

농촌진흥청 국립농업과학원 유해화학과

(2010년 5월 17일 접수, 2010년 6월 3일 수리)

Probabilistic Approach on Dietary Exposure Assessment of Neonicotinoid Pesticide Residues in Fruit Vegetables

Min-Kyoung Paik, Byung-Jun Park*, Kyung-Ae Son, Jin-Bae Kim, Su-Myeong Hong, Won-Il Kim, Geon-Jae Im and Moo-Ki Hong

Chemical Safety Division, National Academy of Agricultural Science, Rural Development Administration

Abstract

The aim of this study is to investigate the exposure assessment of Korean consumers to five neonicotinoid pesticides in fruit vegetables cultivated in Korea, using a probabilistic approach. We used five neonicotinoid pesticides residues (acetamiprid, clothianidin, imidacloprid, thiacloprid, thiamethoxam) data in fruit vegetables reported by Rural Development Administration for the 2009 monitoring programme. Total exposure of five neonicotinoid pesticides for Korean consumer ranged from 0.087 to 0.236 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ at the 95th percentile. The 95th percentile values of total exposure of five neonicotinoid pesticides by probabilistic approach were lower than those by deterministic approach, although mean values of total exposure by probabilistic approach were similar with those of total exposure by deterministic approach. Total exposure to acetamiprid residue may be mainly due to the exposure to acetamiprid through the consumption of strawberry. Also, acetamiprid residues in strawberry were considered as much more contributory factor to total exposure of acetamiprid than consumption data of strawberry. This contributory properties of acetamiprid were similar with those of all other neonicotinoid pesticides, excluding thiacloprid.

Key words neonicotinoid pesticide, fruit vegetables, exposure assessment, probabilistic approach

서 론

FAO/WHO는 1989년부터 잔류농약에 대한 식품오염 모니터링 동시회의에 위해성평가기술을 도입하여 노출에 대한 안전여부를 판단하는데 적용하여 왔는데, 이는 해당 유해물질의 독성자료와 인체노출자료들을 고려하여 그 유해물질의 유해영향 발생확률(probability of adverse outcome)을 계산

함으로써 평가하는 방법이다(Henry, 1997; FAO/WHO, 1997). 최근에는 위해성 평가기술이 발전하여 허용위해수준(acceptable risk value) 등의 정량적인 개념의 관리목표치(managing goal) 제시가 가능하고, 관리적인 면에서의 응용이 활발히 제기되고 있다(이 등, 2001).

그러나, 국내에서 수행된 농약의 오염 수준에 대한 연구들은 검출율이나 잔류허용기준(Maximum Residue Limit; MRL)을 초과하는 시료의 수와 같은 단순 모니터링 프로그램으로 현황만을 제시하고 있거나(심 등, 1992; 이 등, 1996), 이를

*연락처 : Tel. +82-31-290-0504, Fax. +82-31-290-0505
E-mail: bjpark@korea.kr

이용한 노출량 평가 또한 오염도와 섭취량, 체중 등의 변수를 단일값만 이용한 평가(single-point estimates), 즉 확정론적 접근법(deterministic approach)을 통한 평가에 제한되어 실시되어 왔다(이 등, 2001; 김 등, 2008; 이 등, 2009). 그러나, 확정론적 접근법은 평가법이 간단하고 이해가 쉽다는 이점 때문에 노출수준을 확인하는 일차적인 접근에 주로 사용되는 방법이다(Hamey and Harris, 1999; Claeys 등, 2008).

인체 노출평가 방법으로 확정론적 접근법 보다는 모든 변수들을 분포(distribution) 측면에서 고려하여 확률(probability)로 평가하는 확률적 접근법(probabilistic approach)을 이용하는 것이 우리나라 소비자 집단의 모든 특성이 반영된 예측을 하게 함으로서 보다 현실에 가까운 결과를 도출하는 것으로 판단된다(Hamey and Harris, 1999; Vose, 2006).

따라서, 본 연구에서는 2009년 우리나라에서 재배된 과채류의 neonicotinoid계 농약의 잔류량 모니터링 결과를 토대로 첫째, 확률적 접근법을 이용해 우리나라 국민 전체에 대한 총 노출량을 예측하고자 하며, 둘째, 이를 선행연구로 수행된 확정론적 접근법의 결과와 비교함으로써 평가방법간 결과의 활용도를 분석하며, 셋째, neonicotinoid계 농약의 총 노출량에 미치는 요인에 대한 기여도를 세부적으로 평가하고자 한다.

재료 및 방법

자료 수집

과채류 중 neonicotinoid계 농약의 잔류량 자료는 2009년 국립농업과학원에서 수행된 모니터링 자료를 근거로 하였다. 대상 작물은 국내에서 유통되는 다소비 과채류로 가지, 고추, 오이, 토마토, 참외, 수박, 호박 및 딸기의 8작물이었으며, 조사된 neonicotinoid계 농약은 acetamiprid, clothianidin, imidacloprid, thiacloprid, thiamethoxam 5종을 대상으로 하였다. 과채류 섭취량은 국민영양조사 결과 산출된 과채류의 섭취량 자료 중 실제로 과채류를 섭취하는 경우의 안전성을 평가하기 위하여, 모든 국민을 대상으로 하는 자료가 아닌 ‘해당 섭취 소비자’에 대한 자료를 이용하여 평가하였다(식품의약품안전청, 2005; Pieters et al., 2005). 체중은 2001년 국민건강영양조사 결과로 보고된 전국 평균체중인 54.11 kg을 적용하였다(식품의약품안전청, 2004). 가공요인(박피, 조리, 끓임 등)은 본 계산에 포함되지 않았다.

노출평가

우리나라 전체 인구집단의 과채류 섭취를 통한 인체노출

량 평가를 실시하기 위하여 FAO/WHO에서 제시한 만성인체노출평가방법(FAO/WHO, 1997)을 기초로 하였으며, 확률적 접근법을 이용하기 위하여 과채류의 neonicotinoid계 농약의 잔류량 및 노출량 평가에 대해 Crystal Ball® (Decisioneering Co., USA)의 Monte Carlo sampling 기법을 이용함으로써 확률분포형태를 결정하였다.

$$\text{만성인체노출량} = \sum_{i=1}^n \frac{C_i \times I R_i}{B W}$$

C_i = 작물 i 에 함유된 해당 농약의 잔류량

C_i = 작물 i 에 함유된 해당 농약의 잔류량

$I R_i$ = 작물 i 의 섭취량

$B W$ = 체중

해당 농약의 잔류량이 불검출인 경우 정량한계(limit of quantification: LOQ)의 1/2 값으로 대체하여 적용함으로써 도출될 결과의 예측 위험도가 중간인 경우의 시나리오로 평가하였다(Claeys 등, 2008). 조사 농약별 총 노출량은 작물별로 노출량을 평가한 후 합하였으며, 총 노출량에 대한 기여도 평가는 확률적 접근법을 통한 민감도 분석(sensitivity analysis)을 시행하여 확인하였다.

결과 및 고찰

노출평가

Table 1은 neonicotinoid계의 농약별 총 노출량을 확률적 접근법을 통해 평가한 결과이다. Neonicotinoid계 농약별로 확률론적 접근법을 이용해 총 노출량을 평가한 결과 확률분포는 gamma, lognormal 및 beta distribution 형태로 나타나 주로 좌측으로 편향된 분포경향을 보였다. 이는 과채류 섭취량이 일반적으로 normal distribution을 보이는 데 비해, 과채류 중 농약의 잔류량 자료를 최적으로 선정된 분포의 형태가 좌측 편향된 경향을 보이는 데서 기인되는 것으로 생각된다(Claeys 등, 2008).

확률 분포상으로 총 노출량이 가장 높은 수준인 농약은 clothianidin이었으며, 분포의 범위(5th percentile에서 95th percentile까지)가 가장 넓은 농약은 acetamiprid로, 가장 범위가 좁은 농약은 thiacloprid로 나타났다. Neonicotinoid계의 농약 5종의 총 노출량의 극단값(95th percentile), 즉 과다노출군의 총 노출량은 0.087~0.236 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ 의 범위를 보였다.

확정론적 접근법과의 비교

Table 1은 확률적 접근법을 이용하여 농약 별로 과채류 8작물 섭취를 통한 총 노출량을 예측한 결과로서, 이를 확정론적 접근법을 이용한 선행연구의 총 노출량 결과와 비교하여 Fig. 1에 나타내었다. 조사된 농약 중 총 노출량이 많은 농약들의 순서는 두 방법을 이용한 결과에서 유사하게 나타났으며, 총 노출량의 평균치에 대한 확정론적 접근법과 확률적 접근법을 이용한 결과도 거의 유사하였다. 그러나, 총 노출량의 95th percentile에 대해 확정론적 접근법과 확률적 접근법을 이용한 결과를 분석한 결과 전반적으로 확률적 접근법을 이용한 노출평가 결과가 확정론적 접근법을 이용한 결과에 비해 38.8 ~ 62.0 % 수준으로 낮게 나타났다. 이상과 같이, 본 연구에서 확정론적 접근법을 이용한 극단값의 결과가 확률적 접근법을 이용한 결과의 분포 수준을 초과하는 것으로 나타남에 따라 선행 연구에서 점추정치(point estimates)를 이용

한 평가방법으로 인해 전체 우리나라 국민의 노출량이 과다하게 평가되었음을 알 수 있다.

한편, 노출량 평가에 이용되는 변수들, 그 예로 농약잔류량이나 섭취량, 체중 등이 어떤 분포로 적용되는지에 따라 확률적 접근법의 결과가 달라질 수 있다(Vose, 2006). 본 연구에서 확률적 접근법을 이용한 결과가 확정론적 접근법을 통한 결과에 비해 낮게 나타난 것은 확률적 접근 과정 중 과채류에 농약의 잔류량 자료를 최적으로 적용하여 선정된 분포가 좌측으로 극히 편향된 분포를 보였기 때문인 것으로 생각된다.

기여도 평가

농약별 기여도 평가를 위한 첫번째 단계로서 조사 농약의 총 노출량에 미치는 작물별 기여도를 살펴보았다. 농약별 총 노출량에 미치는 작물 요인에 대해 보다 정확한 평가를 하기 위하여 과채류 8작물을 각각 분류하여 노출량을 확률적으로

Table 1. Total exposure of five neonicotinoid pesticide residues through the consumption of fruit vegetables based on a probabilistic exposure assessment approach

Pesticide	Total exposure (µg/kg/day)					
	Mean	5%tile	25%tile	50%tile	75%tile	95%tile
Acetamiprid	0.123	0.074	0.075	0.083	0.155	0.230
Clothianidin	0.191	0.168	0.185	0.185	0.186	0.236
Imidacloprid	0.085	0.074	0.075	0.075	0.094	0.127
Thiacloprid	0.077	0.074	0.074	0.075	0.075	0.087
Thiamethoxam	0.087	0.074	0.075	0.075	0.098	0.123

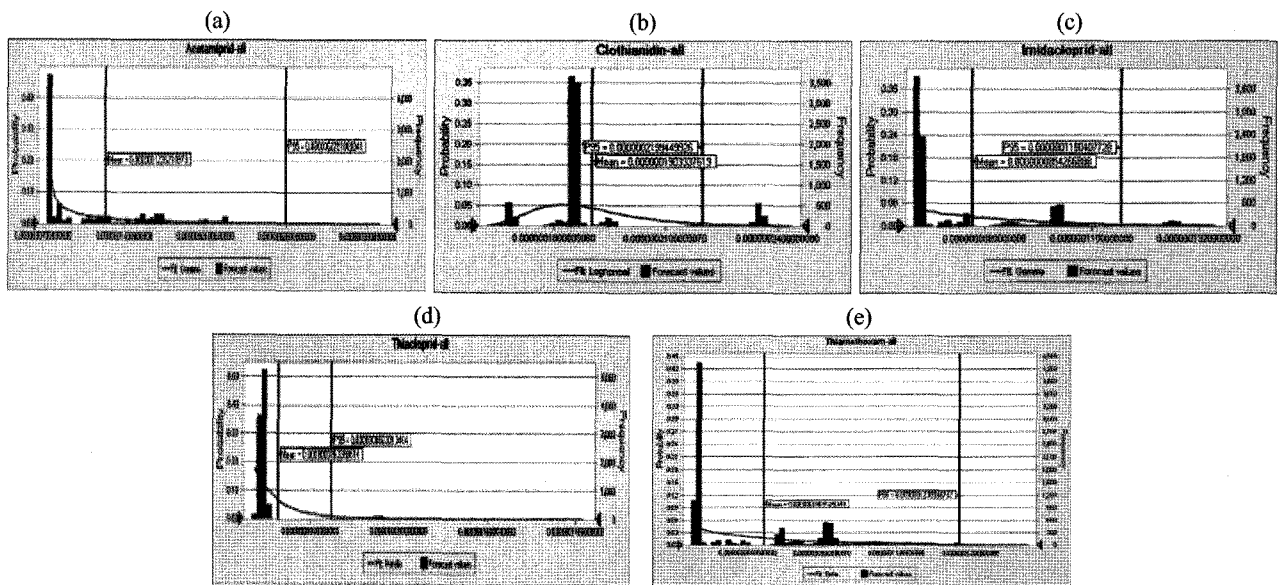


Fig. 1. Best-fitted distribution type of exposure of acetamiprid (a), clothianidin (b), imidacloprid (c), thiacloprid (d) and thiamethoxam (e), based on a probabilistic exposure assessment approach.

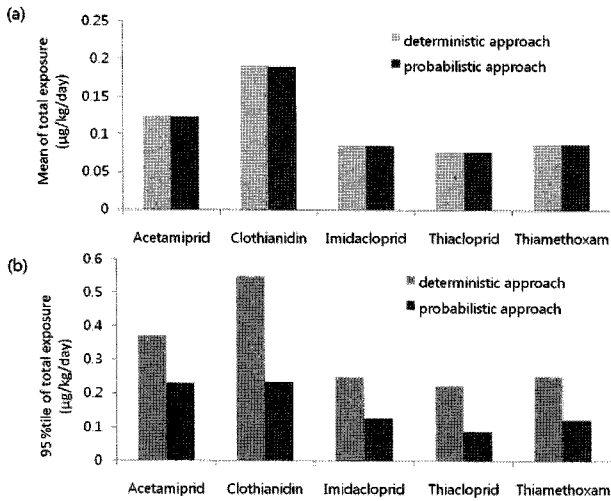


Fig. 2. Comparison between a deterministic approach and a probabilistic approach on total exposure of five neonicotinoid pesticides in terms of mean (a) and 95th percentile (b).

평가하여 그 결과를 Fig. 2에 도시화하였다. Acetamiprid의 경우 딸기의 섭취를 통한 노출량 분포(5th percentile에서 95th percentile까지의 범위)가 가장 넓은 것으로 나타났으며(Fig. 2 (a)), clothianidin의 경우 참외, 수박, 고추의 순으로(Fig. 2 (b)), imidacloprid의 경우 가지, 참외, 고추의 순으로(Fig. 2 (c)), thiamethoxam의 경우 수박, 오이, 참외, 고추의 순으로 해당 농약의 노출량 분포의 범위가 넓음을 알 수 있다(Fig. 2 (e)). Thiacloprid는 과채류 8작물 모두에서 해당 과채류 섭취로 인한 노출량이 특정 수치에 집중되어 있는 경향을 보였다(Fig. 2 (d)).

Acetamiprid는 Table 1에서 총 노출량 분포의 범위가 가장 넓게 나타났으며 Fig. 2(a)에서 작물별로 구분하여 평가한 결과 다른 작물에 비해 딸기 섭취로 인한 노출량 분포의 범위

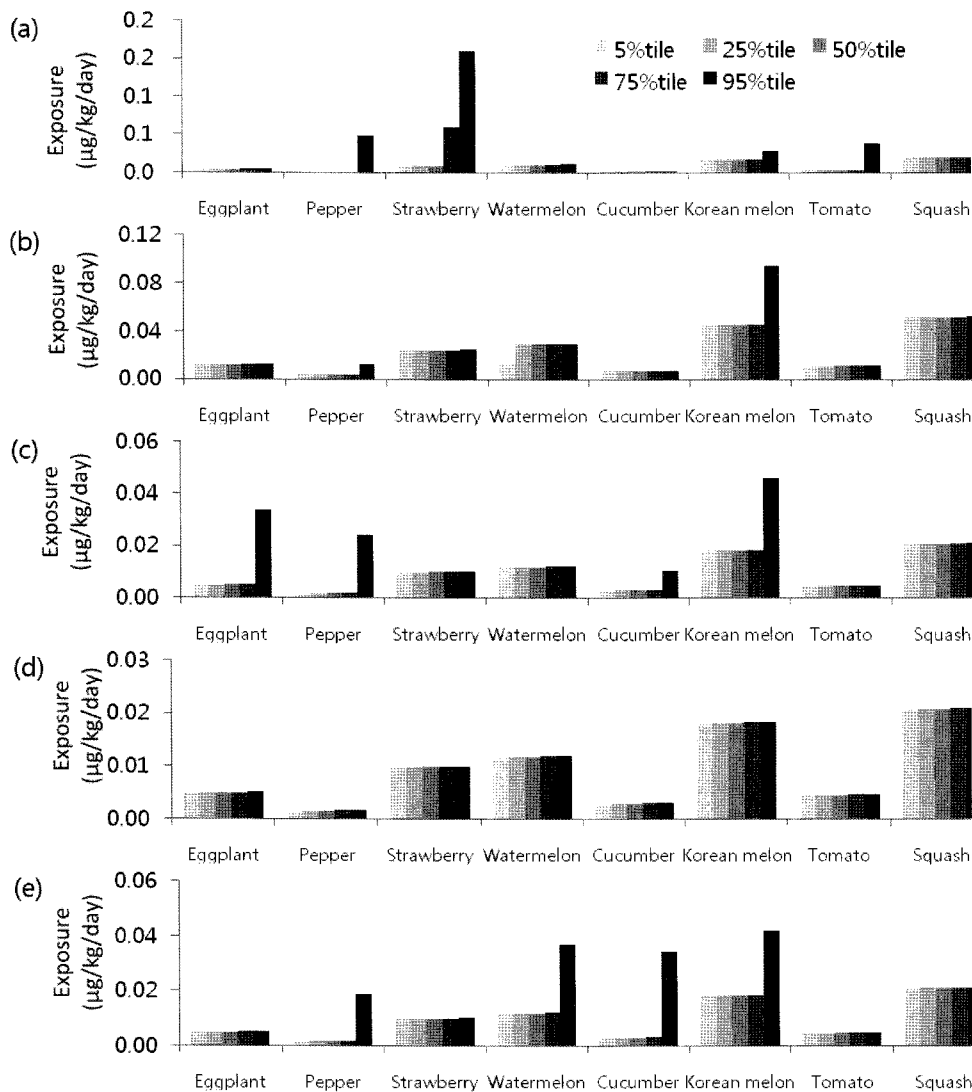


Fig. 3. Exposure of different fruit vegetable to acetamiprid (a), clothianidin (b), imidacloprid (c), thiacloprid (d) and thiamethoxam (e), based on a probabilistic exposure assessment approach.

가 매우 두드러지게 크게 나타나는 것으로 확인됨에 따라 딸기 섭취로 인한 노출량이 전체 과채류 섭취로 인한 acetamiprid의 총 노출량에 미치는 영향이 매우 클 것으로 예상할 수 있다. 즉, 과채류 섭취로 인한 acetamiprid의 총 노출량이 높은 군은 딸기 섭취가 원인이 될 확률이 높을 수 있다는 것을 의미한다.

기여도 평가의 두번째 단계로서 농약의 총 노출량에 본 연구에서 사용한 과채류 중 농약 잔류량 자료, 즉 오염수준이 미치는 영향을 살펴보았다. 본 연구의 노출평가에서 적용된 변수들 중 농약의 잔류 수준이 미치는 영향을 살펴본 이유는 본 연구에서 적용한 과채류 섭취량과 체중 자료가 국민건강영양조사를 통해 제공된 고정된 수치로서 위해가 존재한다고 평가될 경우에도 인위적이 변경이 어려운 요인임을 고려하여 본 연구에서는 현 농약의 오염수준의 기여도를 살펴보았다. Fig. 3 은 과채류 중 개별 농약의 잔류량이 해당 농약의 총 노출량에 미치는 기여도(%)를 평가하기 위하여 확률적 접근법을 통한 민감도 분석(sensitivity analysis)을 시행한 결과를 도시화한 것이다. Acetamiprid의 경우 딸기 중 잔류량이 다른 작물 중 잔류량에 비해 총 노출량에 미치는 기여율이 61.2 %로 매우 높게 나타났다(Fig. 3(a)). Clothianidin은 참외(29.1%), 수박(18.5%), 고추(16.2%) 순으로, imidacloprid는 가지(27.0%), 고추(18.8%), 오이(14.7%) 순으로, thiamethoxam은 수박(31.4%), 오이(26.7%), 고추(11.9%)의 잔류량이 해당 농약의 총 노출량에 기여하고 있는 것으로 나타났다. Thiacloprid의 경우 고추와 오이 두작물의 잔류량이 낮은 비율로 총 노출량에 기여하고 있어 도식화하지 않았다.

확률적 평가 결과 neonicotinoid계 농약의 과채류 섭취를 통한 총 노출량은 개별 과채류의 섭취량보다 과채류 중 농약의 잔류량에 더 많은 영향을 받는 것으로 나타났다. 특히, acetamiprid의 경우 총 노출량이 과채류 8작물 중 특정한 하나의 작물(딸기) 중 잔류 수준에 매우 높은 영향을 받고 있었다. Fig. 2(a)와 Fig. 3(a)의 결과를 종합하여 검토한 결과, 과채류 섭취를 통한 acetamiprid의 총 노출량은 딸기 섭취를 통한 노출에 대한 의존도가 높으며, 딸기 섭취를 통한 acetamiprid의 노출량 또한 딸기의 섭취량이 아니라 딸기 중 잔류된 acetamiprid의 잔류량에 의해 더 크게 좌우될 수 있다는 것을 의미한다. 따라서, 현재의 과채류의 neonicotinoid계 농약의 잔류실태 및 섭취량을 근거로 했을 때 향후 acetamiprid 농약 노출량이 1일 섭취허용량(acceptable daily intake: ADI) 또는 급성참고치(acute reference dose: ARfD)와 비교해서 높은 비율을 나타낼 경우 다른 과채류의 작물보다 딸기 중 acetamiprid 잔류량을 저감화시키는 위해관리 방법이 가장 실효성있는 방안이 될 것으로 생각된다.

기여도 평가와 같은 이상의 결과는 해당 농약의 총 노출량

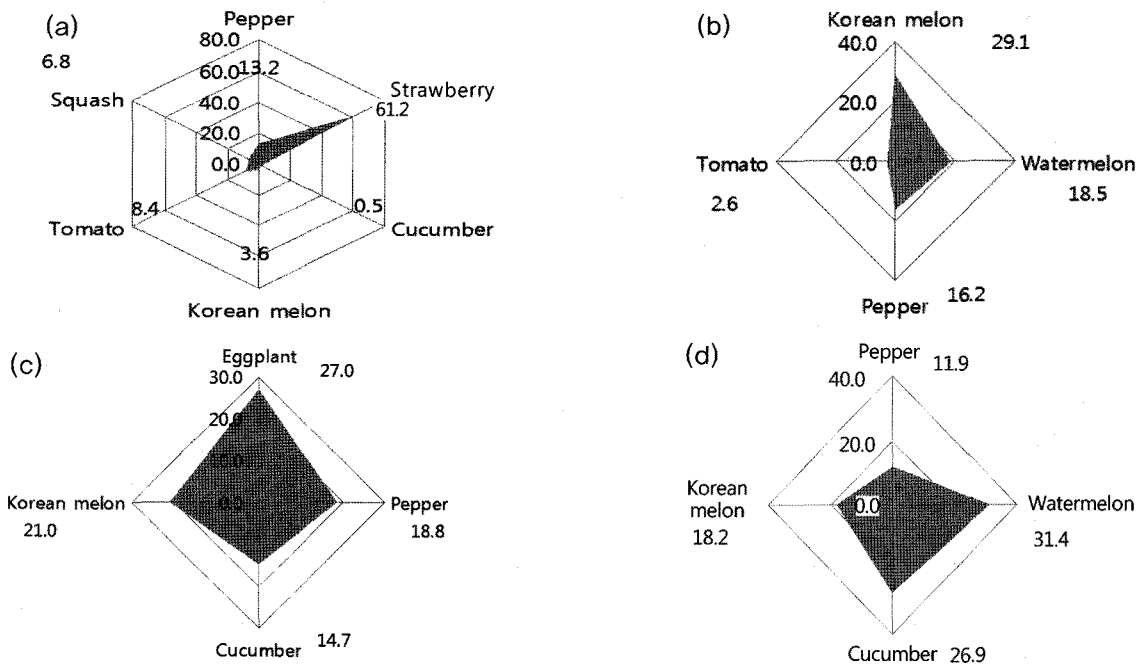


Fig. 4. Contribution (%) of neonicotinoid pesticide residues among different fruit vegetable to the total exposure (in terms of middle-bound scenario) of acetamiprid (a), clothianidin (b), imidacloprid (c) and thiamethoxam (d), based on a probabilistic exposure assessment approach.

을 확률적 접근을 통해 평가한 것으로서, 평균값이나 95th percentile 수치를 이용한 점추정방법인 확정론적 접근을 통해서 는 평가할 수 없는 항목들이다. 농약을 포함한 모든 식품에 존재하는 유해물질은 단일 품목을 통해서만 섭취되는 것이 아니므로 단순히 합산을 통한 노출평가를 할 경우 도출된 결과에 대한 영향을 주는 요인을 추적하지 못하거나 간혹 주관적인 판단으로 인한 해석의 오류를 발생시켜 비현실적인 자료를 생성하게 되고 결과적으로 국가적인 위해관리 정책상에 이용되기 어려운 단점을 가지고 있다(Hamey and Harris, 1999). 본 연구에서 진행한 농약의 노출량에 대한 확률적 접근법을 통한 평가는 향후 정책적인 의사결정 과정에서 주요하게 고려해야 할 항목에 대한 정확한 평가에 활용될 것이다.

>> 인 / 용 / 문 / 헌

- Claeys, W.L., De Voghel, S., Schmit, J.F., Vromman, V. and Pussemier, L. (2008) Exposure assessment of the Belgian population to pesticide residues through fruit and vegetable consumption. *Food Additives and Contaminants* 25(7):851~863.
- FAO/WHO (1997) Food consumption and exposure assessment of chemicals. In Report of a FAO/WHO consultation.
- Henry, C.J. (1997) Risk assessment, risk evaluation and risk management. pp.283~300, In *Food Safety and Toxicity*, CRC

- Press Inc., U.S.A.
- Hamey, P.Y. and Harris, C.A. (1999) The variation of pesticide residues in fruits and vegetables and the associated assessment of risk. *Regulatory Toxicology and Pharmacology* 30:S34~S41.
- Pieters, M., Ossendorp, B. and Slob, W. (2005) Probabilistic modeling of dietary intake of substances. The risk management question governs the method. RIVM. Bilthoven (The Netherlands) Report No. 320011001/2005.
- Vose, D. (2006) Risk analysis - a quantitative guide. 2nd ed. Chichester, Wiley. UK
- 김성훈, 최원조, 백용규, 김우성 (2008) 국내유통농산물 중 잔류농약 모니터링 및 안전성 평가. *한국식품영양과학회지* 27(11): 1515~1522.
- 식품의약품안전청 (2004) 한국인의 대표식단 중 오염물질 섭취량 및 위해도 평가.
- 식품의약품안전청 (2005) 식이노출량 평가를 위한 식품별 섭취량 분포.
- 심태흠, 이태준, 김기철, 유미정, 정의호, 이해금 (1992) 강원도산 농산물 중 잔류농약 실태조사. *식품위생안전성학회지* 7(4):149~156.
- 이효민, 한지연, 윤은경, 김효미, 황인균, 최동미, 이강봉, 원경룡, 송인상, 박성은, 신동천 (2001) 식품을 통한 유기인계 농약류의 동시노출위해성평가. *한국식품위생안전성학회지* 16(1):21~26.
- 이철원, 박건상, 신호선 (1996) 국산다류중 유기염소계 및 유기인계 농약의 잔류량. *한국식품위생안전성학회지* 11(2):99~105.
- 이희정, 최원조, 이주영, 조대현, 강찬순, 김우성 (2009) 국내 유통농산물 중 EBI계 농약 모니터링과 위해도 평가. *한국식품영양과학회지* 39(12):1779~1784.

과채류 섭취를 통한 Neonicotinoid계 농약의 노출평가에 대한 확률적 접근

백민경 · 박병준* · 손경애 · 김진배 · 홍수명 · 김원일 · 임건재 · 홍무기

농촌진흥청 국립농업과학원 유해화학과

요 약 본 연구에서는 우리나라 소비자를 대상으로 우리나라에서 재배된 과채류 섭취를 통한 neonicotinoid계 농약의 노출량을 확률적 접근법을 이용하여 평가하였다. 농약 잔류량을 2009년에 수행된 과채류 중 neonicotinoid계 농약 5종(acetamiprid, clothianidin, imidacloprid, thiacloprid, thiamethoxam)에 대한 모니터링 자료를 이용하였다. Neonicotinoid계 농약의 총 노출량을 개별 과채류별로 구분하여 확률적 평가를 실시한 결과 neonicotinoid계 농약 5종의 총 노출량의 극단값은 0.087~0.236 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ 의 범위를 보였다. 확정론적 접근법의 결과와 비교했을 때 총 노출량의 평균치는 거의 유사하게 나타났으며, 노출량의 95th percentile값에 서는 확률적 접근법의 결과가 확정론적 접근법의 결과에 비해 38.8 ~ 62.0%의 수준으로 낮게 나타났다. 총 노출량에 대한 민감도 분석을 실시한 결과, acetamiprid의 총 노출량은 딸기 섭취를 통한 노출량에 크게 영향을 받으며, 특히 딸기의 섭취량 보다는 딸기 중 acetamiprid 잔류량 수준에 더 크게 영향을 받는 것으로 나타났다. 이는 thiacloprid를 제외한 나머지 3종의 neonicotinoid계 농약에서 유사한 경향을 보였다.

색인어 neonicotinoid계 농약, 과채류, 노출평가, 확률적 접근