

Quantitative analysis and risk assessment on total mercury and methyl mercury in seafood distributed in Daejeon

Sangjoon Lee*, Sujin Oh, Sookkyung Shin, Daehyun Kim, Jihyun Lee, Hojeong Kang, Gunehee Jo

Daejeon Metropolitan City Institute of Health and Environment, Daejeon 34142, Korea



Received: Feb 28, 2022
Revised: Mar 16, 2022
Accepted: Mar 17, 2022

*Corresponding author

Sangjoon Lee
Daejeon Metropolitan City Institute of Health and Environment, Daejeon 34142, Korea
Tel: +82-42-270-6806
E-mail: sigkgkqkqh@gmail.com

Copyright © 2022 Research Institute of Veterinary Medicine, Chungbuk National University. This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

ORCID

Sangjoon Lee
<https://orcid.org/0000-0001-8176-6603>
Sujin Oh
<https://orcid.org/0000-0003-3020-2626>
Sookkyung Shin
<https://orcid.org/0000-0001-8779-5798>
Daehyun Kim
<https://orcid.org/0000-0002-6632-6287>
Jihyun Lee
<https://orcid.org/0000-0003-3169-9195>
Hojeong Kang
<https://orcid.org/0000-0003-2035-3535>
Gunehee Jo
<https://orcid.org/0000-0001-9527-0924>

Conflict of Interest

No potential conflict of interest relevant to this article was reported.

Acknowledgements

This study was financially supported by a research fund from the Daejeon Metropolitan City Institute of Health and Environment in 2021.

Abstract

Mercury and its compounds are globally managed chemicals as risks to the human body and ecosystem. It mainly enters the human body through ingestion of seafood, especially, methylmercury causes serious diseases such as central nervous system (CNS) disorder and renal dysfunction. In this study, total mercury (Hg) and methyl mercury (MeHg) were determined in seafood (16 species, n = 97) commonly consumed in Daejeon, using a gold amalgamation method. The average concentration (Hg/MeHg mean ± S.D. (minimum–maximum) mg/kg) of total Hg and MeHg in the samples was as follows; Fish 0.038 ± 0.058 (0.004 – 0.272) / 0.028 ± 0.047 (N.D. – 0.236), Crustacea 0.023 ± 0.021 (0.003 – 0.078) / 0.016 ± 0.018 (N.D. – 0.055), Mollusks 0.015 ± 0.015 (0.002 – 0.056) / 0.008 ± 0.013 (N.D. – 0.040). The concentration of MeHg in seafood were significantly correlated with total Hg concentration ($p < 0.001$). The species with the highest average concentration of Hg was the Korean rockfish, but there was no sample that exceeded the maximum residual limit. The total %provisional tolerable weekly intake (%PTWI) value of MeHg for all of the samples was 3.76%, compared with the JECFA's reference value, which indicates that there is almost no health risk from heavy MeHg intake through the consumption of seafood distributed in Daejeon.

Keywords: risk assessment; mercury; methyl mercury; PTWI; seafood

INTRODUCTION

양식 기술의 발달 등으로 수산물의 생산량이 증가하고 세계화에 따른 국가 간 교역이 확대되어 수산물의 공급량은 나날이 증가하고 있다. 해양수산부(2017)에 따르면 우리나라가 2013–2015년 기준 1인당 연간 수산물 소비량이 58.4 kg로, 주요국 중 1위를 차지했다고 유엔 식량농업기구(FAO, Food and Agriculture Organization of the United Nations) 세계 수산양식현황(SOFIA, The State of World Fisheries and Aquaculture) 통계를 인용하여 밝혔다.

최근 수산물 소비증가의 원인으로는 양식업 활성화에 따른 수산물 생산량 급증, 국민소득 수준의 향상으로 건강에 대한 관심이 높아져서 육류보다 수산물을 통한 단백질 섭취 증가[1] 및 수산물의 영양성분에 대한 관심 증대와 같은 식품 소비 트렌드의 변화 등으로 분석하고 있으며, 수산물의 소비가 늘어난 만큼, 일본산 수입 수산물의 방사능 오염, 산업폐기물 방출 등에 따른 수산물의 중금속 노출, 양식품목의 동물용의약품 잔류 등 수산물안전성에 대한 검사 요구 또한 커지고

Ethics Approval
Not applicable.

있다.

수은(Mercury, Hg)은 상온에서 액체상태로 존재하는 유일한 금속으로 금속수은, 무기수은 및 유기수은 등 다양한 형태로 해수, 토양, 대기 등의 환경을 순환하고 있다. 무기수은은 주로 환경에 존재하고, 생물체에는 유기수은의 형태로 대부분 존재한다[2]. 생물체에게 가장 독성이 큰 형태는 메틸수은으로, 해양에 침전된 무기수은이 미생물을 통해 메틸수은으로 변환되어 먹이사슬을 통해 상위 영양단계의 생물체에 축적된다[3]. 메틸수은의 위험성은 과거 1950년대 일본 미나마타병, 1971-1972년 이라크의 메틸수은이 함유된 진균제에 오염된 밀 섭취 등의 큰 사건을 통해 국내외로 많은 연구가 진행되었고, 주요독성은 고농도로 장기간 노출 시의 중추신경계 손상과 그밖에 신장기능저하, 구강염증 등이 알려져 있다[4].

또한 미국환경보호국(USEPA, U.S. Environmental Protection Agency)은 메틸수은에 오염된 어패류의 섭취가 사람의 메틸수은 노출의 주요경로라고 명시하고 있다[5]. 특히 체내에 들어온 메틸수은은 혈액뇌장벽과 태반장벽을 통과할 수 있기 때문에 뇌에 축적되기 쉬우며, 임신 기간 동안 노출 시 태아의 발달에 심각한 손상을 줄 수 있어 섭취의 제한을 권고하고 있다[6]. 그리고 메틸수은 화합물은 1993년 국제암연구소(IARC, International Agency for Research on Cancer)에 의해 발암물질로도 분류되어 있다.

이와 같이 수은 및 그 화합물은 노출로 인한 인체 및 생태계 전반에 관한 위험성이 계속 알려지면서 세계적으로 관리가 되는 화학물질이다. 우리나라 또한 2014년에 유엔환경계획(UNEP, UN Environment Programme)에서 제정된 ‘수은에 관한 미나마타 협약’에 서명하였고[7], 2018년 부산소제 양식장 광어에서 수은이 기준치 이상 검출된 경우가 있었으며, 그 원인은 다량어류 부산물이 함유된 사료를 다량으로 사용했기 때문인 것으로 조사되었다[8]. 이처럼 국내 소비되는 수산물에 대해서는 수은의 축적 등의 위해 가능성이 항상 존재하기 때문에 식품의약품안전처 등 정부 각 기관에서 관심을 갖고 꾸준한 감시를 하고 있다. 특히 각 시도 보건환경연구원에서는 공영도매시장에 농수산물검사소를 설치하여 관내 유통 중인 수산물에 대하여 중금속 등이 허용기준을 초과하여 검출될 경우 즉각 규제 조치를 취할 수 있도록 감시체계를 구축하고 있다.

그런데, 현재 우리가 일반적으로 섭취하는 수산물의 경우 수은의 기준·규격은 총수은 함량 위주로 설정되어 있고, 보다 위험성이 큰 메틸수은은 먹이사슬 최상위에 있는 다량어류, 심해성어류와 새치류에 한해서 기준이 설정되어 있다. 따라서 본 연구에서는 도매시장을 중심으로 대전 지역에서 유통되고 있는 수산물 16품목 총 97건을 대상으로 현재 기준·규격이 설정 되어 있는 총수은 외에 메틸수은의 함량 분석을 실시하고, 이를 바탕으로 위해도 평가를 수행하였다. 이를 통해 보건상 위해 발생을 예측하고 다소비 수산물의 안전성 검증을 위한 기초 자료로 활용하고자 한다.

MATERIALS AND METHODS

시료

2021년 대전 지역 농수산물 도매시장에서 유통되는 수산물을 중심으로 16품목, 총 97건을 대상으로 분석하였다. 건조수산물을 포함하여 해양 어류, 연체류, 갑각류로 3개의 그룹을 모두 수거하였고, 이 중 소비 빈도가 높은 명태, 오징어, 홍합, 새우와 같은 건조수산물의 경우 대응 생물 품목도 수거하였다. 해양어류는 8품목(갈치, 고등어, 멸치, 명태, 삼치, 우럭, 전어, 조기) 45건, 연체류는 6품목(꽃뚜기, 오징어, 주꾸미, 가리비, 바지락, 홍합) 39건, 갑각류는 2

품목(계, 새우) 13건으로, 이 중 건조수산물은 6품목 30건, 생물은 14품목 67건이다.

표준품 및 시약

분석에 사용된 수은 표준원액은 Mercury standard solution(1,000 mg/L, Kanto, Tokyo, Japan)을 사용하였으며, 메틸수은은 염화메틸수은(methylmercury[III] chloride, Sigma-Aldrich, MO, USA)을 L-cysteine(Duksan, Ansan, Korea) 1.0 g, 아세트산나트륨 0.8 g, 무수 황산나트륨 12.5 g (Daejung, Siheung, Korea)을 증류수 100 mL에 녹여 제조한 L-cysteine 용액에 녹여 1,000 mg/L 농도로 제조하여 사용하였다.

기기분석(총수은)

식품공전의 제8실험법 9.1.6 수은분석법 중 금아말감법 원리를 이용하여 수은 함량을 분석하였다. 균질화한 시료를 약 0.03 g을 자동수은분석기(Automatic Mercury analyzer, Model DMA-80, Milestone, Bergamo, Italy)에 주입하여 분석하였다. 기기분석 조건은 Table 1과 같다.

기기분석(메틸수은)

식품공전의 제8실험법 9.1.7 메틸수은 분석법 중 제2법으로 측정하였고, 식품공전의 실험법에 따라 전처리한 시료 100 μ L를 주입하였고, 분석기기와 분석조건은 총수은 분석과 동일하게 측정하였다.

수분보정

수산물의 증금속 기준은 생물 기준으로 적용하게 되어 있어, 건조 수산물의 검출농도에 수분보정계수를 곱하여 생물 기준으로 환산하였다. 건조물의 수분함량과 생물의 수분함량은 국가표준식품성분표 제9개정판[9]에 있는 수분함량을 적용하였으며, 수분보정계수는 아래와 같이 계산하였다.

$$\text{수분보정계수} = (100 - \text{생물수분함량}\%) / (100 - \text{건조수산물수분함량}\%)$$

유효성 검증

수은과 메틸수은의 표준용액을 5가지 농도로 제조하여 검량선을 각각 작성하여 직선성의 범위를 확인하였으며, 각각의 검출한계(LOD, limit of detection)와 정량한계(LOQ, limit of

Table 1. Analytical conditions of DMA-80

Parameter	Analysis condition
Drying temperature ($^{\circ}$ C)	200
Drying time (sec)	60
Decomposition temperature ($^{\circ}$ C)	650
Decomposition time (sec)	60
Purge time (sec)	60
Amalgamator heating temperature ($^{\circ}$ C)	850
Amalgamator time (sec)	12
Recording time (sec)	30

quantitation)는 ICH[10](International council for technical requirements of pharmaceuticals for human use)에서 제시한 산출 방법을 따랐다. 예상 정량한계 농도를 7회 연속 분석하여 얻은 표준편차(δ)를 이용하여 아래 산출 방법에 따라 검출 및 정량한계를 구하였다.

$$\begin{aligned} \text{검출한계(limit of detection, LOD)} &= 3.3\delta \times S^{-1} \\ \text{정량한계(limit of quantification, LOQ)} &= 10\delta \times S^{-1} \end{aligned}$$

수은의 회수율(recovery)은 인증표준물질(CRM, certified reference material)인 BCR-277R (European Commission IRMM, Geel, Belgium)을 총수은 분석법으로 3회 반복 측정하여 CRM에서 제시한 인증값($\text{Hg}-0.128 \pm 0.017 \text{ mg/kg}$)과 비교하여 구하였으며, 메틸수은의 회수율은 3개의 혼합 시료에 메틸수은 표준용액을 $10 \mu\text{g/kg}$ 이 되도록 첨가하여 측정하였다.

통계분석 및 위해도평가

자료의 통계분석은 SPSS 28.0(Statistical Package for Social Science, IBM, Armonk, NY, USA)을 이용하였으며, 먼저, 건조수산물과 생물 간의 총수은과 메틸수은 함량 차이를 비교하기 위해 공통품목 4품목 간 *t*-test를 실시하였다. 그리고 해양어류, 연체류, 갑각류 그룹별 총수은, 메틸수은함량 차이를 알아보기 위해 ANOVA test를 실시한 후, Levene 통계량으로 등분산검정을 한 뒤 등분산일 경우, Scheffe법을, 등분산이 아닐 경우, Games Howell법으로 사후검증을 하였으며, 모두 $p < 0.05$ 수준에서 유의성을 검정하였다. 제8기 1차 국민건강영양조사 및 국민영양통계(2019)[11]를 참고하여 각 품목별 메틸수은의 주간섭취량(EWI, estimated weekly intake)을 산출한 후, 이를 JECFA가 설정한 잠정주간섭취허용량(PTWI, provisional tolerable weekly intake)과 비교, 분석함으로써 메틸수은 축적에 의한 위해도를 평가하였다.

RESULTS

유효성 검증

수은과 메틸수은의 표준용액을 각각 10 ng/mL 와 100 ng/mL 가 되게 희석한 후, 10 ng/mL 용액을 $0, 50, 100 \mu\text{L}$ 를 주입하고, 100 ng/mL 용액을 $50, 100, 200 \mu\text{L}$ 주입하여 수은과 메틸수은의 양이 $0, 0.5, 1, 5, 10, 20 \text{ ng}$ 이 되도록 검량선을 작성하였으며, 수은과 메틸수은 모두 0.9999 로 우수한 상관성(R^2)을 보였다. 수은과 메틸수은의 검출한계, 정량한계 및 회수율의 측정 결과는 Table 2와 같다.

국제식품규격위원회(CODEX)[12]에서 제시하는 회수율 범위는 0.1 mg/kg 초과 1 mg/kg 이하 구간은 $70\%-110\%$, 상대표준편차 15% 이하이며, $1 \mu\text{g/kg}$ 초과 0.01 mg/kg 이하 구간에서는 $60\%-120\%$, 상대표준편차 30% 이하로, 본 연구는 기준에 부합하는 것을 확인하였다.

총수은 및 메틸수은 함량 분석

건조물과 생물간 함량분석

명태, 새우, 오징어, 혼합 4가지 품목의 건조물과 생물의 총수은 및 메틸수은 함량은 Table 3에 나타내었다.

Table 2. Parameters of Hg and MeHg analysis by DMA-80

Element	Parameter		
	LOD ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	LOQ ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	Recovery (mean \pm RSD) (%)
Hg	0.260	0.787	100.1 \pm 3.8
MeHg	0.281	0.852	90.2 \pm 9.8

LOD, limit of detection, LOQ, limit of quantitation; RSD, relative standard deviation.

건조물과 생물간의 총수은 및 메틸수은 함량에 차이가 조금은 있으나, 각 품목별 *T*-test 결과, 모두 통계적으로 유의한 차이를 나타내지 않았다($p > 0.05$). 따라서 품목별 함량분석에서는 건조수산물과 생물을 구분하지 않았다.

품목별 함량분석

시료의 개별 품목과 해양어류, 연체류, 갑각류 그룹별 총수은과 메틸수은의 평균함량을 Table 4에 나타내었으며, 총수은의 평균함량이 높은 순으로 Fig. 1에 요약하였다. 총수은의 평균함량은 해양어류 0.038 \pm 0.058 mg/kg, 연체류 0.014 \pm 0.016 mg/kg, 갑각류 0.023 \pm 0.021 mg/kg으로, Choi 등[13]의 연구결과와 같이 해양어류, 갑각류, 연체류의 순으로 높은 함량을 보였으나, 해양어류와 연체류만이 통계적으로 유의한 차이가 있었다($p < 0.05$). 해양어류의 총수은 평균함량은 Cho 등[14]이 연구한 경기도내 유통 생선류의 수은 평균 함량 (0.04 mg/kg)과 유사한 수치를 나타내었다.

해양어류 중 총수은의 평균함량이 가장 높은 품목은 0.127 \pm 0.066 mg/kg의 우럭이었고, 최고 함량값은 갈치 0.272 mg/kg이었다. 갈치(0.085 \pm 0.0118 mg/kg)와 고등어(0.048 \pm 0.013 mg/kg)는 해양어류 전체 평균값 이상의 총수은 평균함량을 보였으며, 조기, 명태, 삼치, 전어, 멸치의 순으로 높은 함량을 보였다. 우럭의 평균함량이 높은 결과는 부산보건환경연구원의 수산물 안정성조사(2018-20)[15]에서도 나타났으며, 갈치, 고등어의 평균함량 결과 역시 유사했다.

연체류의 경우, 오징어의 평균함량은 0.035 \pm 0.017 mg/kg로 해양어류와 비슷한 결과를

Table 3. Analytical conditions of GC-NPD (unit, mg/kg)

Sample	N	Hg	MeHg
		Mean \pm S.D. (Min. – Max.)	Mean \pm S.D. (Min. – Max.)
Pollack	5	0.022 \pm 0.009 (0.011 – 0.035)	0.011 \pm 0.005 (0.006 – 0.019)
Pollack (D)	5	0.019 \pm 0.014 (0.012 – 0.044)	0.014 \pm 0.007 (0.009 – 0.026)
Shrimp	5	0.018 \pm 0.004 (0.003 – 0.030)	0.011 \pm 0.009 (0.002 – 0.021)
Shrimp (D)	5	0.013 \pm 0.009 (0.003 – 0.025)	0.007 \pm 0.006 (N.D. – 0.015)
Squid	5	0.029 \pm 0.017 (0.005 – 0.052)	0.023 \pm 0.017 (0.003 – 0.040)
Squid (D)	5	0.041 \pm 0.017 (0.016 – 0.056)	0.027 \pm 0.013 (0.008 – 0.039)
Mussel	4	0.007 \pm 0.004 (0.003 – 0.013)	0.001 \pm 0.001 (N.D. – 0.004)
Mussel (D)	5	0.003 \pm 0.001 (0.002 – 0.004)	0.000 \pm 0.000 (N.D. – 0.000)

N, number of sample; D, dried.

Table 4. Summary of Hg and MeHg concentrations in seafood (unit, mg/kg)

Group	Sample name	N	Hg mean ± S.D. (Min. – Max.)	MeHg mean ± S.D. (Min. – Max.)	%MeHg	
Fish	Korean rockfish	3	0.127 ± 0.066 (0.069 – 0.199)	0.081 ± 0.028 (0.049 – 0.102)	63.4	
	Hair tail	7	0.085 ± 0.118 (0.007 – 0.272)	0.068 ± 0.104 (0.003 – 0.236)	80.8	
	Mackerel	5	0.048 ± 0.013 (0.035 – 0.064)	0.041 ± 0.007 (0.029 – 0.053)	85.3	
	Croaker	5	0.022 ± 0.012 (0.010 – 0.039)	0.020 ± 0.011 (0.008 – 0.032)	89.4	
	Pollack	10	0.020 ± 0.011 (0.011 – 0.044)	0.014 ± 0.006 (0.006 – 0.028)	69.3	
	Spanish mackerel	6	0.019 ± 0.010 (0.008 – 0.033)	0.009 ± 0.007 (0.002 – 0.020)	48.8	
	Gizzard	4	0.011 ± 0.003 (0.009 – 0.015)	0.007 ± 0.005 (0.002 – 0.013)	66.0	
	Anchovy		5	0.007 ± 0.002 (0.004 – 0.010)	0.002 ± 0.003 (N.D. – 0.007)	34.7
			45	0.038 ± 0.058 (0.004 – 0.272)	0.028 ± 0.047 (N.D. – 0.236)	
Mollusks	Squid	10	0.035 ± 0.017 (0.005 – 0.056)	0.025 ± 0.014 (0.003 – 0.040)	71.7	
	Scallop	10	0.014 ± 0.007 (0.006 – 0.022)	0.003 ± 0.004 (N.D. – 0.008)	23.0	
	Little neck clam	5	0.012 ± 0.005 (0.006 – 0.020)	0.002 ± 0.005 (N.D. – 0.012)	19.9	
	Webfoot octopus	5	0.007 ± 0.004 (0.003 – 0.013)	0.002 ± 0.002 (N.D. – 0.004)	24.2	
	Beka squid	5	0.005 ± 0.002 (0.002 – 0.007)	0.001 ± 0.001 (N.D. – 0.002)	22.8	
	Mussel		9	0.005 ± 0.004 (0.002 – 0.013)	0.000 ± 0.001 (N.D. – 0.004)	10.0
39			0.015 ± 0.015 (0.002 – 0.056)	0.008 ± 0.013 (N.D. – 0.040)		
Crustacea	Crab	3	0.047 ± 0.031 (0.016 – 0.078)	0.040 ± 0.025 (0.012 – 0.055)	85.5	
	Shrimp	10	0.015 ± 0.010 (0.003 – 0.030)	0.009 ± 0.007 (N.D. – 0.021)	59.0	
		13	0.023 ± 0.021 (0.003 – 0.078)	0.016 ± 0.018 (N.D. – 0.055)		

보였으나($p > 0.05$), 나머지 5품목은 전체 연체류 평균값 이하의 함량을 보였다.

갑각류의 경우, 새우는 0.015 ± 0.010 mg/kg로 연체류와 비슷한 평균함량을 보였고, 게는 0.047 ± 0.031 mg/kg로 해양어류와 비슷한 함량을 보였다($p > 0.05$). 97건의 시료 중 국내 설정된 총수은 잔류허용기준(해양어류, 연체류 0.5 이하)을 초과한 품목은 없었다.

메틸수은의 함량은 총수은의 함량과 높은 상관관계를 보였다($r = 0.966, p < 0.001$; Fig. 2). 따라서 총수은의 함량이 높을수록 메틸수은의 평균함량이 높은 경향을 보였으며, 해양어류 0.028 ± 0.047 mg/kg, 갑각류 0.023 ± 0.021 mg/kg, 연체류 0.008 ± 0.013 mg/kg의 순으로 나타났다. 전어의 메틸수은 평균함량(0.007 ± 0.005 mg/kg)이 가리비(0.003 ± 0.004 mg/kg), 바지락(0.002 ± 0.005 mg/kg)보다 높은 것을 제외하면 품목별 메틸수은의 평균함량은 총수은과 동일한 순이었다. 생물농축이 적을 것으로 예상되는 오징어를 제외한 연체류(꽃뚜기, 주꾸미, 가리비, 바지락, 홍합), 멸치 등은 총수은 대비 메틸수은의 비율이 35% 미만

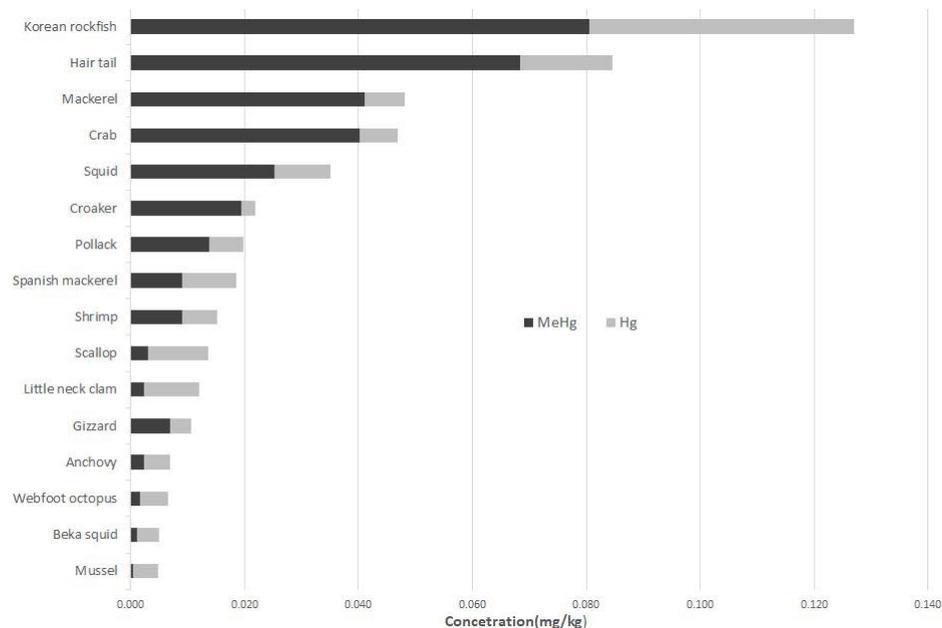


Fig. 1. Concentration of total mercury and methyl mercury in each species.

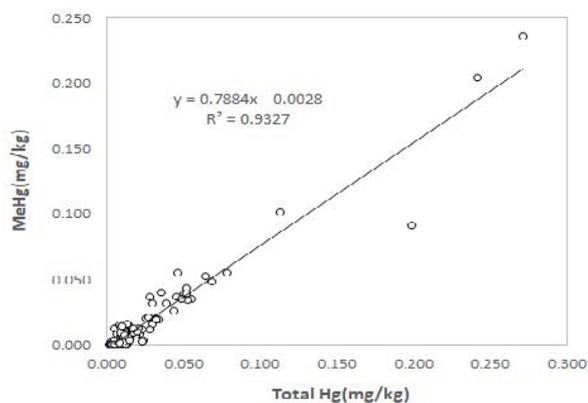


Fig. 2. Correlation between total Hg and methyl Hg in seafood.

으로 나타났다. 오징어와 게의 메틸수은 평균함량은 총수은과 마찬가지로 해양어류와 유사한 경향을 보였다($p < 0.05$). 연체류 중 두족류(꽃뚜기, 오징어, 주꾸미)의 경우, 개체의 크기가 클수록 메틸수은의 평균함량이 높았다. 이러한 결과는 메틸수은의 함량이 생물학적 분류에 따른 영향보다 개별 생물의 먹이활동에 따른 생물농축의 영향이 더 크기 때문으로 판단된다.

위해도평가

뚜렷한 건강의 위해 없이 평생 동안 매주 섭취할 수 있는 양을 잠정주간섭취허용량(PTWI)이라고 하며, 국내의 경우, 인체노출안전기준이란 명칭으로 식품의약품안전평가원에 공개되어 있다. 수은과 관련된 국내 인체노출안전기준은 신장기능이상과 건강영향관련성 연구에 근거하여 무기수은 $3.7 \mu\text{g}/\text{kg}$ b.w.(body weight)/week, 메틸수은의 경우 태아의 신경발달독성에 근거하여 $2.0 \mu\text{g}/\text{kg}$ b.w./week으로 2013년에 설정되었다. 일본의 경우도 $2.0 \mu\text{g}/\text{kg}$ b.w./week으로 설정되어 있다.

2003년, FAO/WHO(World Health Organization)의 합동 식품 첨가물 전문가회의(JECFA)에서는 기존에 설정되어 있던 총수은 5.0 $\mu\text{g}/\text{kg b.w./week}$ 의 PTWI에서 별도로 메틸수은 1.6 $\mu\text{g}/\text{kg b.w./week}$ 를 설정하였다. 무기수은의 경우, 2010년 어패류를 제외한 식품에서 4.0 $\mu\text{g}/\text{kg b.w./week}$ 로 낮추어 설정하였다. 따라서 어패류를 시료로 한 본 연구의 위해도 평가는 메틸수은의 위해도를 평가했으며, 국내보다 기준이 낮은 JECFA의 기준을 택하였다. 앞에서 구한 품목별 메틸수은의 평균함량과 제8기 1차 국민건강영양조사 및 국민영양통계(2019)의 식품별 일일섭취량, 전체 체중 통계 수치(61.6 kg)를 이용하여 메틸수은의 주간섭취량(EWI)을 구하였고 각 수치를 Table 5에 나타내었다.

전체 16품목에 의한 메틸수은의 EWI는 0.060 $\mu\text{g}/\text{kg b.w./week}$ 로 JECFA의 메틸수은 PTWI 대비 3.76%로 나타났다. 이는 시료 16품목의 메틸수은 EWI가 JECFA 기준의 메틸수은 PTWI보다 약 26.6배 낮음을 뜻한다. 일일섭취량과 메틸수은의 함량이 고루 높은 오징어가 메틸수은 섭취에 가장 높은 기여도를 보였으며, 고등어, 갈치, 우럭, 게, 명태 등의 순으로 기여도가 높았다. Joo[16], Moon[17], Choi 등[13]의 다른 국내연구에서 보고한 결과와 기여도 상위 품목은 같았다. 식품의 일일섭취량과 메틸수은의 함량이 높은 품목일수록 기여도가 높아지기 때문에 국가별로는 수산물 소비패턴에 따라 기여도 상위 품목이 다를 수 있다. 유럽의 경우, 일반적으로 다랑어, 돛류, 농어가 메틸수은 위해도에 대한 기여도가 높다[18].

CONCLUSION

2021년 대전시에서 유통되는 수산물의 수은 오염도 현황 파악과 안전성 검증의 자료로써 유통 수산물 16품목 97건을 수거하여 총 수은과 메틸수은의 함량 모니터링을 실시하였다. 금아말감법 원리를 이용한 자동수은분석기를 사용하여 분석하였고, 총수은과 메틸수은 분석을

Table 5. Estimated weekly intake of MeHg in each species

	Daily intake (g/day)	MeHg (mean) (mg/kg)	EWI ¹⁾ ($\mu\text{g}/\text{kg b.w./week}$)	%PTWI
Squid	4.70	0.025	0.0135	0.84
Mackerel	2.33	0.041	0.0109	0.68
Hair tail	1.01	0.068	0.0079	0.49
Korean rockfish	0.74	0.081	0.0067	0.42
Crab	1.46	0.040	0.0067	0.42
Pollack	3.65	0.014	0.0057	0.36
Croaker	1.57	0.020	0.0035	0.22
Shrimp	3.40	0.009	0.0035	0.22
Anchovy	2.96	0.002	0.0008	0.05
Spanish mackerel	0.60	0.009	0.0006	0.04
Little neck clam	1.31	0.002	0.0004	0.02
Webfoot octopus	0.54	0.002	0.0001	0.01
Mussel	1.27	0.000	0.0001	0.00
Gizzard	0.08	0.007	0.0001	0.00
Scallop	0.15	0.003	0.0001	0.00
Beka squid	0.03	0.001	0.0000	0.00
Total	25.79	0.020	0.0602	3.76

¹⁾ Estimated weekly intake = (Mean MeHg in each food × Daily food intake × 7) / 61.6 (b.w.).
EWI, estimated weekly intake; b.w.: body weight; PTWI, provisional tolerable weekly intake.

위한 분석법 타당성을 검토한 결과, 총수은의 검출한계와 정량한계는 0.260 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 0.787 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 메틸수은의 검출한계와 정량한계는 0.281 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 0.852 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 으로 나타났으며, 검량선의 상관계수는 두 성분 모두 0.9999, 회수율은 각각 100.1%, 90.2%로 나타났다. 수거 수산물의 총수은과 메틸수은의 평균함량은 건조수산물과 생물 사이에선 통계적으로 유의한 차이가 없었으며, 해양어류 0.038 mg/kg와 0.028 mg/kg, 갑각류 0.023 mg/kg, 0.016 mg/kg, 연체류 0.015 mg/kg, 0.008 mg/kg의 순으로 높았다. 총수은과 메틸수은의 평균함량은 높은 상관관계를 보였으며, 수거품목 중 우럭, 갈치, 고등어에서 상대적으로 높은 함량을 보였다. 계와 오징어는 어류와 유사한 함량을 보였고, 총수은 대비 낮은 메틸수은 함량의 오징어를 제외한 연체류와 멸치는 생물농축의 영향이 적은 것으로 판단된다. 97건 중 국내 설정된 총수은 잔류허용기준을 초과한 품목은 없었으며, 분석을 통해 얻은 개별 품목별 메틸수은의 평균함량을 통해 위해도평가를 위한 노출량을 계산하여 JECFA에서 설정한 PTWI와 비교하여 위해도를 %PTWI로 평가한 결과, 총 %PTWI는 3.76%로 나타났다.

REFERENCES

1. Kim HY, Kim SY, Lee JH, Jang YM, Lee MS, Park JS, Lee KH, Kim JC. Monitoring of heavy metals in fishes. *Korean J Food Sci Technol* 2007;39:353-359.
2. King JK, Kostka JE, Frischer ME, Saunders FM. Sulfate-reducing bacteria methylate mercury at variable rates in pure culture and in marine sediments. *Appl Environ Microbiol* 2000;66:2430-2437.
3. Díez S. Human health effects of methylmercury exposure. *Rev Environ Contam Toxicol* 2008;198:111-132.
4. The Food Safety Commission, Japan. Food safety risk assessment related to methylmercury in seafood [Internet]. 2005 [cited 2022 Feb 28]. Available from: https://www.fsc.go.jp/english/index.data/methylmercury_risk_assessment.pdf
5. U.S. Food and Drug Administration. Advice about eating fish: for women who are or might become pregnant, breastfeeding mothers, and young children, from the environmental protection agency and food and drug administration; revised fish advice. FDA, Silver Spring, MD. Report No.: 2019-14524.
6. U.S. Department of Health and Human Services, U.S. Department of Agriculture. Dietary guidelines for Americans 2015–2020 [Internet]. 2015 [cited 2022 Feb 28]. Available from: <https://health.gov/our-work/food-nutrition/previous-dietary-guidelines/2015>
7. Korea Ministry of Environment. Minister of environment signed the Minamata convention on mercury [Internet]. 2014 [cited 2022 Feb 28]. Available from: <http://www.me.go.kr/home/web/board/read.do?menuId=286&boardMasterId=1&boardCategoryId=39&boardId=389860>
8. Korea Ministry of Oceans and Fisheries. The cause of exceeding the mercury standard for farmed flatfish was due to feed [Internet]. 2018 [cited 2022 Feb 28]. Available from: <https://www.mof.go.kr/article/view.do?articleKey=21222&searchSelect=title&boardKey=11&menuKey=972¤tPageNo=16>
9. National Institute of Agricultural Sciences. 9th revision Korean food composition table [Internet]. 2019. [cited 2022 Feb 28]. Available from: <http://koreanfood.rda.go.kr/kfi/fct/>

fctFoodSrch/list#

10. ICH [International Council for Harmonisation of Technical Requirements for Pharmaceuticals for Human Use]. Harmonised tripartite guideline Q2(R1) [Internet]. 2005 [cited 2022 Feb 28]. Available from: <https://database.ich.org/sites/default/files/Q2%28R1%29%20Guideline.pdf>
11. Korea Centers for Disease Control and Prevention. 8th Korea National Health and Nutrition Examination Survey (KNHANES) [Internet]. 2019 [cited 2022 Feb 28]. Available from: <https://www.khidi.or.kr/kps/dhraStat/result10?menuId=MENU01663&gubun=ageall&year=2019>
12. CAC [CODEX Alimentarius Commission]. Guidelines on good laboratory practice in residue analysis [Internet]. 2010 [cited 2022 Feb 28]. Available from: https://www.fao.org/input/download/standards/378/cxg_040e.pdf
13. Choi M, Yun S, Park HJ, Lee JY, Lee IS, Hwang DW, Yoon MC, Choi WS. Concentrations and risk assessment of total mercury and methyl mercury in commercial marine fisheries from Korea. *Korean J Fish Aquat Sci* 2017;50:675-683.
14. Cho YS, Kim KC, Kim KA, Kang SH, Jung YJ, Kwak SH, Lee PS, Lee WH, Moh A, Yong KC, Yoon MH. A study on heavy metals and selenium contents of seafoods commonly consumed in Gyeonggi-Do. *J Food Hyg Saf* 2017;32:211-216.
15. Busan Metropolitan City Institute of Health & Environment. The annual report of Busan Metropolitan City Institute of Health & Environment Vol. 28-30 [Internet]. 2019–2021 [cited 2022 Feb 28]. Available from: <https://www.busan.go.kr/ihe/hedataroom03>
16. Joo HJ, Noh MJ, Yoo JH, Jang YM, Park JS, Kang MH, Kim MH. Monitoring total mercury and methylmercury in commonly consumed aquatic foods. *Korean J Food Sci Technol* 2010; 42:269-276.
17. Moon HB, Kim SJ, Park H, Jung YS, Lee S, Kim YH, Choi M. Exposure assessment for methyl and total mercury from seafood consumption in Korea, 2005 to 2008. *J Environ Monit* 2013;13:2400-2405.
18. Jacobs S, Sioen I, Jacxsens L, Domingo JL, Sloth JJ, Marques A, Verbeke W. Risk assessment of methylmercury in five European countries considering the national seafood consumption patterns. *Food Chem Toxicol* 2017;104:26-34.