부산 연근해 저서어류 체내의 미량금속 분포 특성과 잠재적 인체 위해성 평가

Distribution and Potential Human Risk Assessment of Trace Metals in Benthic Fish Collected from the Offshore of Busan, Korea

최진영 · 김경련*

Jin Young Choi · Kyoungrean Kim*

한국해양과학기술원

Korea Institute of Ocean Science and Technology

(Received June 15, 2015; Revised June 19, 2015; Accepted June 25, 2015)

Abstract : Trace metals concentrations in the tissue of edible marine fish (4 species), olive flounder (*Paralichthys olivaceus*), Korean rockfish (*Sebastes schlegelii*), file fish (*Stephanolepis cirrhifer*) and abyssal searobin (*Lepidotrigla abyssalis*), collected near the Yongho wharf in Busan were determined to assess the potential human health risk (HRA) of trace metals by fish consumption. Levels of Li, Cr, Ni, Cu, Zn, As, Cd, and Pb in the fish tissue were 0.005 ± 0.009 , 0.77 ± 0.30 , 0.29 ± 0.34 , 0.49 ± 0.14 , 15.96 ± 2.52 , 10.62 ± 4.67 , 0.001 ± 0.002 , and 0.045 ± 0.06 mg/kg dw respectively. The estimated daily intakes of Cu and Zn and the estimated weekly intakes of As, Cd, and Pb from the fish collected near the Yongho wharf were 0.0032, 0.054-0.18% of PMTDI (provisional maximum tolerable daily intake) and 13, 0.0041, 0.020% of PTWI (provisional tolerable weekly intake) which were set to evaluate the food safeties by the JFCFA (The Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives). Lifetime cancer risk and target hazard for local residents due to those fish consumption were found to be negligible.

Key Words : Benthic Fish, Trace Metals, Estimated Daily Intake, Human Risk Assessment, Lifetime Cancer Risk, Non-cancer Risk

요약 : 본 연구는 부산연근해에서 서식하는 저서어류 체내의 미량금속에 의한 인체 위해 영향을 정량적으로 평가하기 위하여 수행되었다. 부산의 용호부두 인근에서 채취된 4종의 식용저서어류 넙치, 우럭, 쥐치, 밀달갱이 조직내의 미량금속(trace metals)의 함량을 ICP-MS를 이용하여 분석하였다. 그리고 이를 토대로 어류섭취를 통한 미량금속의 인체 노출량을 파악하고, 이로 인한 잠재적 인체 위해도 평가를 수행하였다. 4종의 어류 조직 내 미량금속의 평균함량은 Li, Cr, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Pb이 각각 0.005 ± 0.009 , 0.77 ± 0.30 , 0.29 ± 0.34 , 0.49 ± 0.14 , 15.96 ± 2.52 , 10.62 ± 4.67 , 0.001 ± 0.002 , 0.045 ± 0.06 mg/kg dw으로 나타났다. 이 지역에서 채취된 어류의 섭취로 인한 표준체중(60 kg)의 국민에 대한 노출평가 결과 Cu, Zn은 PMTDI (provisional maximum tolerable daily intake)의 0.0032, 0.054-0.18%, As, Cd, Pb는 PTWI (provisional tolerable weekly intake)값의 13, 0.0041, 0.020%로 나타나 합동식품첨가물전문가위원회(The Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives, JFCFA)에서 권고하는 각원소의 제한섭취량에 비하여 매우 낮은 수준이었다. 그리고 독성(비발암)위해도 평가 결과는 모두 HI (hazard index)지수가 1 이하로 장기간 섭취하여도 안전한 것으로 나타났으며, 4종의 모든 어류섭취로 인한 As의 노출로 인한 초과 발암 위험도도 10만명 당 1명 이하로 나타나 역시 장기섭취로 인한 발암 확률도 무시할 만한 수준인 것으로 나타났다.

주제어 : 저서어류, 미량금속, 1일 인체 노출량, 인체위해성평가, 생애발암위해도, 비발암(독성)위해도

1. 서론

미량금속은 일반적으로 자연 환경에서 미량으로 존재하는 금속원소이다. 그러나 오늘날 산업활동 및 급속한 경제 성장에 의해서 인위적으로 이용되고, 재배치되면서 환경적으로 재 분산되고 있어, 특정지역 혹은 물질에 미량금속의 농도를 증가시키고 있다.^{1,2)} 미량금속은 하천, 대기 등의 다양한 경로를 통해 해양으로 유입되며 해양생물에게 이용되는데, 환경 중 미량금속의 증가는 궁극적으로 해양생물에 영향을 미칠 수 있다. 특히 해양환경으로 유입된 금속은 용해, 흡착, 공침 등의 형태로 미량만이 용존상태의 자유이온으로 존재하며 대부분 쉽게 입자나 유기물에 흡착되어 침강함으로써 해저면에 퇴적되게 된다. 그러므로 퇴적물에는 미량금속을 포함한 오염물질이 많이 농축, 잔류되어있다. 퇴적물 내에 함유된 미량금속은 수소이온농도, 염분, 산

화환원 전위, 유기물 함량 등의 여러 환경 요인에 의해 다시 수권으로 재 용출이 가능하다.³⁻⁶⁾

저서생물은 퇴적물 및 저서환경의 오염물질에 직접 노출되어 섭식과 함께 오염물질들을 체내에 농축하기 때문에 퇴적물 오염에 대한 감시자로 이용되기도 한다. 그리고 저서생물에 농축된 오염물질은 먹이사슬을 통해 상위 섭식자에게 이동, 농축되게 되며, 수산물로서의 저서생물은 인간에게 오염물질의 노출요인이 되어 오염물질의 함유량에 따라 위해성을 가질 수 있다. 특히 우리나라는 일본에 이어 세계에서 2번째로 수산물 소비량이 많은 국가이며,⁷⁾ 건강증진에 대한 국민의 관심이 급속도로 높아지고 있어 육류보다 수산물을 통한 단백질 섭취가 늘어나고 있는 추세이다.⁸⁾ 2012년도의 국민 1인당 연간어류 공급량은 22.77 kg (1일 1인당 62.37 g)이며 전년도(20.56 kg)에 비하여 2.21 kg (10.8%) 증가하였다.⁹⁾ 미량금속에는 생명활동에 필수적인 원소인

* Corresponding author E-mail: kyoungrean@kiost.ac Tel: 031-400-6185 Fax: 031-408-4493

필수금속들과 생명활동에 필요하지 않고 해로운 비필수금속들이 있다.¹⁰⁾ 필수금속이라도 기준농도 이상의 경우에는 인체위해성이 있을 수 있다. 비필수금속은 식품에 속한 경우 낮은 농도일지라도 사람의 건강에 해를 끼칠 우려가 있으며 수은, 납, 카드뮴, 비소 등은 생체 축적성이 있어 장기간 지속적으로 섭취하게 되면 체내 독성을 유발할 수 있다.¹¹⁻¹⁵⁾ 국제식품규격위원회(Codex Alimentarius commission, Codex)에서는 어류에 대한 납 함량기준을 2006년도에 0.3 mg/kg으로 설정하는 등 기준규격을 강화하고 있다.¹⁶⁾ 뿐만 아니라 오염물질에 대한 인체 노출 정도와 그에 따른 발생 가능한 인체영향에 대한 정도와 심각성을 정량적으로 산정하는 인체위해성 평가시스템이 오염물질 관리전략에 있어서 매우 중요한 과정으로 인식되고 있다.¹⁷⁾

인체 위해성 평가란 어떠한 물질에 인체가 노출되었을 때 일어날 수 있는 독성 및 발암성에 대한 확률을 추정하는 과정으로, 이는 환경오염으로 인한 위해도를 단순히 수치적으로 계산하는 과정만이 아니라 오염물질의 발생부터 인체로의 영향까지를 통계학적, 수학적, 사회정책 및 경제학적 측면까지 고려하여 정책결정과 일반대중이 합리적인 합일점을 찾도록 과학적 근거를 제시할 수 있는 방법론이다.¹⁷⁾ 국외에서는 오염된 식품(농작물, 어패류 등)의 유해오염물질들에 대한 인체위해성평가에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있으며, 국내의 경우에도 몇몇 유해오염물질의 위해성 평가연구는 일부 연구자들에 의해서 활발히 진행되어오고 있다. 특히 수산물의 유기오염물질오염 및 이에 대한 인체위해성평가는 매우 활발히 수행되어오고 있다.¹⁸⁻²²⁾ 그러나 국내 식품에서의 미량금속 함량 및 위해성평가모델을 적용한 인체위해성평가 연구는 극히 일부 식품에 대해서만 일부 연구자에 의해 수행되었고^{17,23,24)} 수산물의 미량금속 함량에 대한 연구는 일부 연구되어있으나^{8,15,25)} 인체위해성평가에 대한 연구는 전무한 실정이다.

대도시에 인접한 해역은 특히 상층해수는 청정하더라도 퇴적물은 오염되어 있는 경우가 흔하다.²⁶⁾ 또한 연안해역 퇴적물은 선박의 통상적인 운영에 의해 해역으로 배출되거나 고의적으로 처분한 폐기물, 대기경로로 유입된 오염물질을 저장하고 있다.²⁶⁾ 그런데 국내 해안지역 도시의 주민들의 수산물 섭취량은 타 지역에 거주하는 주민들보다 높다.²²⁾ 실제로 전국 시도를 대상으로 한 식품군별 섭취량 조사에 따르면, 부산지역의 동물성 식품 섭취량 중 어류섭취가 차지하는 비율은 $56.4 \pm 2.7\%$ 로 전국최고로 나타났다.²²⁾ 우리나라에서는 2000년 이후부터는 식품의약품안전처에서 총식이조사(TDS, total diet study)를 실시하고 있지만, 지역별로 소비되는 어패류의 종류와 그 어패류의 오염물질함량이 다르므로, 보다 자세한 식품군, 지역 혹은 인구집단 등으로 정밀하게 TDS를 분석할 필요가 있다.

부산광역시 남구 용호동의 광안대교 남단에 위치한 용호부두는 주로 소규모 어선들이 활동하고 있으며, 주변 횃집 등에서 어패류가 많이 소비되는 지역이다. 이 지역은 1950년대 작은 어촌마을이 형성됨으로 사람들이 거주하기 시작

하였으며, 1963년 동국제강이 공장부지 확보를 위하여 공유수면을 매립하여 1990년대 중반까지 공장 부지로 활용되었다. 그러나 도시화가 심화되면서 동국제강은 이전하였으며, 1996년 용호동에 도시설계지구를 결정하여 66만 5천 m² 부지에 현재 약 75만 여명(총 8,523세대)이 거주하고 있는 대형 주택단지가 조성되어있다. 이 주택단지에는 도심하천인 용호천과 대연천이 외해로 연장되어 있는데, 하천의 흐름이 원활하지 않고, 육상으로부터의 오염물질 유입이 지속적으로 일어나 악취와 오염이 문제가 되어 2010년부터 2012년까지 해양오염퇴적물 정화사업이 실시되었다. 그러나 이 해역은 육상기인 오염물질의 차단, 정비가 미흡하여 해양오염퇴적물 정화사업 이후에도 퇴적물의 재 오염이 우려되고 있다.

그러므로 본 연구에서는 해양오염퇴적물 정화사업이 진행되는 시기에 용호부두 인근에서 채취된 어류체내의 미량금속의 분포를 파악하여 해양오염퇴적물 정화사업 전, 후의 환경변화를 평가하기 위한 모니터링의 기초자료 중 일부로 사용하였으며, 이를 기초로 인접 해역의 어류섭취로 인한 미량금속의 노출수준 및 잠재적인 인체 위해성을 평가하여, 앞으로 대상 지역의 해양환경 관리를 위한 기초 자료로 제시하고자 하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 시료채취

어류시료는 용호부두 인근에서 2011년 12월에서 2012년 2월에 걸쳐 채취되었다(Fig. 1). 채취된 어류는 넙치(olive flounder, *Paralichthys olivaceus*), 밑달갱이(Abyssal Searobin *Lepidotrigla abyssalis*), 쥐치(tread-sail filefish, *Stephanolepis*

Fig. 1. Sampling locations of fish samples near the Yongho wharf of Busan, Korea.

Table 1. Biological information on fish samples collected from the offshore of Yongho wharf in Busan, Korea in 2012

Scientific name	Common name	Number of pool	Weight (g)	Length (cm)	Lipid%	Moisture (%)	Average consumption rate (g/day) ^{a)}	Habitat
<i>Paralichthys olivaceus</i>	Oliver flounder	5	1027.8 ± 184.5	45.8 ± 3.0	1.5 ± 0.4	89 ± 2.1	2.92	benthic
<i>Sebastes schlegelii</i>	Korean rockfish	12	178.4 ± 86.9	21.4 ± 2.7	4.6 ± 1.7	78 ± 3.1	0.81	benthic
<i>Stephanolepis cirrhiifer</i>	File fish	11	143.7 ± 48.8	21.6 ± 2.8	1.4 ± 1.2	33 ± 0.2	1.80	benthic
<i>Lepidotrigla abyssalis</i>	Abyssal searobin	7	227.8 ± 28.6	28.1 ± 1.2	4.3 ± 0.3	82 ± 5.2	0.04	benthic

^{a)} Reference data for consumption rate of those species in Korea⁹⁾

cirrhiifer), 우럭(korean rockfish, *Sebastes schlegelii*) 4종이 있으며 각각 5, 12, 11, 7개체를 분석에 사용하였다. 어류시료에 대한 자세한 정보를 Table 1에 나타내었다. 채집 즉시 미리 세척된 PE백에 넣은 후 아이스박스에 넣고 드라이아이스로 냉동보관 하였다. 시료는 상온에서 해동 후 어류 중앙부의 등 지느러미 아래쪽에서 조직(근육)을 분취하였다. 채취된 어류조직은 산 세척 된 유리바이알에 담고 동결건조(Labconco Freezone 6, USA)한 후 조직분쇄기로(Agate mortar, Frits, Germany) 균질화 하였다. 균질화된 건조시료는 분석 전까지 냉동고에 보관하였다.

2.2. 어류조직 내 미량금속 분석

냉동고에 보관된 어류의 건조 조직분말을 분석전에 실온 혹은 오븐건조를 이용하여 방냉하였다. 어류의 조직은 미리 산 세척된 테프론 용기에 넣고 Supra급 nitric acid (Merck, Germany) 5ml를 넣고 180℃에서 24시간 동안 조직이 완전히 용해될 때까지 가열하였으며 산을 증발시킨 후 2% nitric acid로 희석하여 Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (ICP-MS, Thermo elemental X-7)로 분석하였다. 미량금속 분석을 위한 시료는 채취된 어류의 각 종류별로 복합(composited)시료를 조성하여 종류별로 5개의 복합시료를 취하여 미량금속 분석을 3회 반복 분석하였으며 분석된 농도를 평균하였다. 사용한 모든 기구 및 초자는 10% hydrochloric acid (Merck, Germany)에 3일 이상 담근 후 milli-Q water로 세척하여 청정조건에서 건조 후 사용하였다. 표준 물질은 NRC Canada의 DORM-4를 이용하였으며 87~99%의 회수율을 보였다.

2.3. 인체위해성 평가방법

본 연구에서는 미국 국가연구위원회(NRC, National Research Council)와 국립과학원(NAS, National Academy of Sciences)에 의해 고안된²⁷⁾ 인체위해성평가방법을 이용하였다. 이 방법은 유해성 확인(hazard identification), 노출평가(exposure assessment), 용량-반응평가(dose-response assessment) 및 위험도 결정(risk characterization)의 4단계로 이루어진 방법으로 이루어진다.

노출평가는 다음과 같은 1일 노출량 또는 섭취량인 EDI (estimated daily dose)를 이용해서 이루어졌다. 노출평가를

위해 식 (1)을 이용하여 각 어류의 평균 오염도와 섭취량으로부터 용호부두 인근해역에서 채취된 어류섭취에 따른 인근주민의 미량금속의 1일 인체 노출량, EDI를 산출하였다.

$$\text{Estimate dietary intake (EDI)} = \sum_{i=0}^n \frac{C_i \times \text{IR}_i}{\text{BW}} \quad (1)$$

i : 분석된 수산물 종류

C_i : 수산물 i의 오염물질 농도($\mu\text{g/kg ww}$)

IR_i : 수산물 i의 1일 평균 섭취량(g/day)

BW : 체중(60 kg)

대상어류를 통하여 노출되는 미량금속에 대한 안전성 평가는 계산된 EDI 및 주간섭취량(estimated weekly intake, EWI)을 국제연합식량농업기구(FAO), 세계보건기구(WHO) 연합 국제식품 규격위원회(The Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives, JFCFA)에서 권고하는 각 미량금속의 잠정 주간 섭취허용량(PTWI, provisional tolerable weekly intake) 및 1일 최대 섭취 한계량(PMTDI, provisional maximum tolerable daily intake)과 비교하여 평가하였다. PTWI란 중금속 등과 같이 축적되고 서서히 대사되는 성질을 지닌 오염물질의 경우 섭취량의 중요성을 강조하기 위하여 평생 섭취해도 인체에 무해한 양을 1주일을 단위로 정한 것이다. 그리고 PMTDI는 축적되는 성질을 가지지 않는 오염물질의 경우 인체에 노출되어도 무방한 최대량을 1일 단위로 정한 것이다.

일반적으로 용량-반응평가는 유해물질에 대한 인체영향을 threshold의 유무에 기본 가정을 두고 발암물질과 비발암 물질로 나누어 평가한다. 용호부두 인근해역에서 채취된 어류섭취에 따른 인근주민의 미량금속의 노출량에 따른 발암위해도와 비발암 위해도를 결정하기 위해서 미국 환경보호청(US EPA)에서 제시한 독성자료(IRIS) 중 각 금속원소들의 발암잠재력 및 참고섭취량을 기준으로 하여 독성평가를 실시하였다. 금속물질 중 발암잠재력(cancer slope factor, CSF)이 산정되어있는 물질(As)에 대한 장기노출에 따른 초과 생애발암위해도(lifetime cancer risk, LCR)를 식 (2)를 이용하여 산출하였다. 일반적으로 허용 위해도는 10^{-5} 의 위해도(de minimis risk)를 초과하면 허용 가능한 수준으로 간주

하지 않는다. 화학물질 발암성에 따른 미국 EPA의 분류에 따르면 비소는 인체 발암성이 있는 발암물질로 구분하여 IRIS data base에서는 비소의 발암잠재력 SF값을 1.5 mg/kg-day로 제시하고 있다.²⁸⁾

$$\text{Lifetime cancer risk} = \frac{\text{IR}_i \times C_i \times \text{ED} \times \text{EF} \times \text{CSF}_o}{\text{BW} \times \text{AT}} \quad (2)$$

IR_i : 수산물 i의 1일 평균 섭취량(g/day)
C_i : 수산물 i의 오염물질 농도(mg/kg ww)
ED : 노출기간(70 years)
EF : 노출빈도(365 day/year)
CSF_o : 경구노출 시 발암 잠재력(oral cancer slope)²⁸⁾
BW : 체중(60 kg)
AT : 발암물질에 대한 평균노출시간(365 day/year × number of exposure years, assuming 70 years)

비발암(독성)위해도(THQ, target hazard quotient)는 비발암물질의 노출에 따른 위해도 결정을 위한 것으로 용량-반응 평가를 통해 산출된 참고섭취량(RfD_o)²⁸⁾과의 비교를 통해 위험 값(hazardous quotient, HQ)을 평가하는 것이다.²⁹⁾ 또한 모든 노출경로나 오염물질에 따른 비발암(독성)위해도는 이들 HQ 지수들을 총합한 HI (hazard index)로 나타낸다. 식 (3), (4)을 이용하여 용호부두 인근에서 채취된 어류 섭취로 인한 주민들의 미량금속의 노출의 비발암(독성)위해도를 산출하였다. 비발암(독성)위해도는 결과치가 1.0을 초과하는 경우 위해영향 발생가능성이 있는 것으로 간주하며, 1.0 이하인 경우는 위험발생가능성이 없는 것으로 간주한다.

$$\text{Target hazard quotient (THQ)} = \frac{\text{IR}_i \times C_i \times \text{EF} \times \text{ED}}{\text{RfD}_o \times \text{BW} \times \text{AT}} \quad (3)$$

$$\text{Hazard index (HI)} = \frac{\sum \text{THQs (sum of target hazard quotients)}}{\quad} \quad (4)$$

IR_i : 수산물 i의 1일 평균 섭취량(g/day)
C_i : 수산물 i의 오염물질 농도(μg/kg ww)
ED : 노출기간(30 years)

EF : 노출빈도(365 day/year)
RfD_o : 만성경구노출 참고치(mg/kg-day)⁵¹⁾
BW : 평균체중(60 kg)
AT : 비발암물질에 대한 평균노출시간(365 day/year × number of exposure years, assuming 70 years)

3. 결과 및 토의

3.1. 어류 조직 내 미량금속 농도

부산 용호부두 인근에서 채취된 어류의 근육 내 미량금속 Li, Cr, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Pb 함량의 분석결과를 Table 2에 나타내었다. 분석된 모든 어류 조직내의 각 미량금속의 평균 농도의 순위는 Zn > As > Cr > Cu > Ni > Pb > Li > Cd 였으며 평균농도는 각각 15.96 ± 2.52, 10.62 ± 4.67, 0.77 ± 0.30, 0.49 ± 0.14, 0.29 ± 0.34, 0.045 ± 0.06, 0.005 ± 0.009, 0.001 ± 0.002 mg/kg dw이었다.

습증량(mg/kg wet weight, mg/kg ww)으로 환산한 Li의 농도범위는 nd.-0.003 mg/kg ww로 평균함량은 취치에서 0.003 ± 0.003 mg/kg ww로 가장 높았으며 우럭에서는 검출되지 않았다. 육류, 유제품, 생선, 계란 등에 일반적으로 Li이 함유되어 있으며 함유량은 생산지의 지리적 영향을 받는다고 알려져 있으나 보고된 자료가 거의 없다.³⁰⁾ 본 연구에서 조사된 어류(조직)중의 Li 함량은 자연함량 수준이며 오염가능성은 없는 것으로 판단된다. Li은 필수원소 중 하나로 인체에서 중추신경계에 영향을 미치는 원소이며, 배설 반감기가 24시간이고 심각한 독성유발물질이 아니기 때문에 국내 국외에 모두 식품에 대한 Li 함량에 대한 규제는 없다.³¹⁾

어류조직 중의 Cr은 nd.-0.56 mg/kg ww의 범위로 검출되었다. 취치의 평균함량이 0.56 mg/kg ww으로 가장 높았으며 넙치와 우럭이 각각 0.04, 0.05 mg/kg ww으로 나타나 종에 따른 차이를 보였다. 본 조사에서의 어류 조직 중 Cr 농도는 Hwang³²⁾이 보고한 국내산 해산어류의 Cr 농도(0.05 ± 0.05 mg/kg ww)보다 비교적 더 높은 것으로 나타났으며, 방글라데시의 식용민물어류에서 분석된 농도(31 ± 32 mg/kg ww)보다 현저히 낮았다.³³⁾ 3가 Cr은 필수 미량원소로 당과 지방의 대사에 관여하며, 단백질 분해성분이다. 반면 6가 이온은 반응성이 강하고 독성이 있으며 돌연변이 유발원이

Table 2. Trace metal concentrations in fish species collected from the offshore of Yongho wharf in Busan, Korea unit: mg/kg dw

	Li	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
<i>P. olivaceus</i>	0.005 ± 0.011	0.28 ± 0.16	0.16 ± 0.05	0.46 ± 0.07	14.41 ± 0.40	8.67 ± 3.30	0.002 ± 0.003	0.027 ± 0.031
<i>S. schlegelii</i>	nd. ^{a)}	0.23 ± 0.16	0.077 ± 0.059	0.37 ± 0.09	14.81 ± 1.05	9.58 ± 4.90	nd. ^{a)}	0.027 ± 0.029
<i>S. cirrhifer</i>	0.005 ± 0.005	0.42 ± 0.42	0.89 ± 0.40	0.63 ± 0.17	20.83 ± 1.02	9.82 ± 0.20	nd. ^{a)}	0.019 ± 0.001
<i>L. abyssalis</i>	0.011 ± 0.011	0.75 ± 0.05	0.32 ± 0.12	0.61 ± 0.07	16.67 ± 0.19	17.87 ± 2.09	nd. ^{a)}	0.14 ± 0.054
Range	nd.-0.025	0.79 - 0.84	0.009-1.29	0.27-0.79	13.63-21.85	3.61-19.96	nd-0.008	nd-0.20
Mean	0.005	0.77	0.29	0.49	15.96	10.62	0.001	0.045

^{a)} Not detected

나,³⁴⁾ 경구섭취에 대한 발암가능성은 없는 것으로 분류되어 있다.²⁸⁾ Cr에 대한 식품 규제기준은 미국식품의약국(FDA, Food and Drug Administration)에서 갑각류는 12 mg/kg, 패류는 13 mg/kg로 규정하고 있으며 그 이외의 국가에서는 규제하고 있지 않다.³²⁾

어류 조직중의 Ni 평균함량은 쥐치에서 0.59 ± 0.29 mg/kg ww으로 가장 높았으며 밑달갱이, 넙치, 우럭에서 평균 0.06, 0.02, 0.02 mg/kg ww였다. Ni 역시 필수 미량원소로 요소의 가수분해를 돕는다. 그러나 Ni은 피부접촉과민, 신장독성 등이 보고되어있으며,³¹⁾ 폐렴, 폐섬유증 같은 폐질환을 일으킨다고 보고되었다. 미국환경청의 IRIS 에서는 Ni을 인체발암가능물질로 분류하고 있다.²⁸⁾ 국내산 어류의 Ni의 농도는 발표된 바가 없으며, 방글라데시의 식용 민물어류 구라미와 메기에서 0.14-3.0 mg/kg ww이 보고되어있다.³⁴⁾

Cu는 어류 조직 중에서 0.04-0.53 mg/kg ww 범위로 검출되었으며 4가지 어종 중 쥐치에서 평균농도 0.42 ± 0.11 mg/kg ww으로 가장 높았으며 우럭에서 0.08 ± 0.02 mg/kg ww으로 가장 낮았다. 이는 국내에서 보고된 연안어류종의 Cu 농도(0.04~3.74 mg/kg ww)와 Kim⁸⁾과 Hwang³²⁾이 보고한 국내 유통되고 있는 어류종의 Cu농도 보다 낮은 수준이다. Cu는 일반적으로 생물 체내에 널리 분포되어 있으며 해산물에 특히 많이 함유되어 있다고 보고되어 있다. Cu는 필수 원소로 소아의 1일 필요섭취량은 1 mg, 성인은 5 mg 정도이나, 다량섭취시 간 독성, 만성용혈성중독, 저혈압 등의 독성을 일으키는 것으로 알려져 있다.³⁷⁾ 호주와 캐나다, 영국은 각각 70 mg/kg, 50 mg/kg, 20 mg/kg으로 어류 중 Cu 함량을 제한하고 있다.³⁸⁾

어류 조직 중에서 Zn은 1.51-14.64 mg/kg ww의 범위로 검출되었으며 쥐치에서 18.96 ± 0.68 mg/kg ww으로 가장 높았으며 밑달갱이에서 3.00 ± 0.04 mg/kg ww이었으며 우럭과 넙치는 3.26 ± 0.23 , 1.58 ± 0.04 mg/kg ww으로 비슷한 농도를 보였다. 이는 Sho¹⁵⁾가 국내 다른 연구에서 분석된 연안어류의 아연함량(0.92-18.33 mg/kg ww)과 비슷한 수준이었으며 패류의 함량보다는 낮았다.¹⁵⁾ 국외에서는 방글라데시 식용민물어류에서 2015년에 1.1-7.2 mg/kg ww이 보고되었다.³³⁾ Zn은 70여종 이상의 효소에 필수원소로 과잉 섭취에 의한 중독은 드물지만 아연을 도금한 관에 들어있는 음료를 섭취하거나 Zn 도금한 용기 사용으로 인한 위장관 장애와 설사에 대한 보고가 있다.³⁹⁾ As는 본 연구에서 0.04-6.71 mg/kg ww 범위로 검출되었으며 종별 평균 함량은 쥐치가 6.58 ± 0.13 mg/kg ww로 나머지 3종의 어류 넙치, 우럭, 쥐치에 비하여 2배정도 높았다. 본 연구결과는 Sho 등¹⁵⁾이 연구한 국내 연안 어류의 As함량 평균은 0.84 (0.01-5.45) mg/kg ww, Kim⁸⁾이 보고한 국내산 해산어류의 As함량 평균은 2.52 (0.14-65.54) mg/kg ww과 유사한 값을 보였다. 오스트레일리아, 뉴질랜드는 1.0 mg/kg 캐나다에는 3.5 mg/kg, 핀란드는 5 mg/kg로 어패류 및 수산제품의 As 허용기준을 정하고 있다. 사실 비소는 지각 및 자연계에 많이 분포하고 있는 원소이며, 생물에는 독성이 없는 유기비소의 형태로

함유되어 있다고 알려져 있어¹³⁾ FAO/WHO에서는 식품을 통한 비소섭취량에는 독성이 강한 무기비소만 15 µg/kg-bw으로 정하고 있다.⁴⁰⁾ 그러나 아직까지 생체 내 생리작용이 구체적으로 밝혀져 있지 않은 부분이 많으며 환경오염으로 인해 수산물에 존재할 수 있는 무기비소의 문제점이 대두되고 있다.³²⁾

본 어류 조직 중 Cd 함량은 넙치에서만 평균 0.001 mg/kg으로 검출되었고 다른 어류에서는 검출되지 않았으며 이는 Sho¹⁵⁾이 보고한 연안어류에서 0.020 (nd.-0.094) mg/kg ww, 일본의 비 오염지역의 어패류에서 보고된 0.05-3.66 mg/kg⁴¹⁾ 보다 낮았다. Pb는 nd.-0.04 mg/kg ww의 범위로 검출되었으며 종별 평균함량은 밑달갱이가 0.026 ± 0.01 mg/kg ww, 우럭과 쥐치에서는 0.006 ± 0.006 , 0.012 ± 0.010 mg/kg ww이었으며 넙치에서는 0.003 ± 0.003 mg/kg ww이었다. 이는 국내 유통중인 어류의 Pb농도 nd.-0.423 mg/kg, 국내산 해산어류의 Pb농도 0.16 ± 0.03 mg/kg에 비하면 매우 낮은 농도이다.³²⁾ Pb는 필수 금속과 경쟁하여 헤모글로빈과 같은 분자들과 결합하여 기능을 방해하기 때문에 식용부진, 소화불량, 복통 등의 급성독성을 나타낸다. Pb, Cd의 수산물을 통한 사람으로의 이행은 소량이거나 무시할 정도인 것으로 보고되어 있다.⁴²⁾ 외국의 Pb 규제치는 덴마크가 0.3 mg/kg, 호주가 1.5~2.0 mg/kg, 독일, 뉴질랜드, 네덜란드가 0.5 mg/kg, 캐나다는 10 mg/kg이고 국내 어패류 잔류허용기준은 2.0 mg/kg이다.⁴³⁾

어류체내의 금속함량은 종과 계절 변화에도 많은 영향을 받는 것으로 보고되고 있다.^{33,38)} 그러므로 대상해역에서 포획되는 수산물의 미량금속분포를 정확히 파악하기 위해서는 계절에 따른 미량금속에 대한 연구가 계속적으로 필요하다고 판단된다.

3.2. 인체위해성 평가

본 연구에서는 용호만에서 채취된 어류의 섭취를 통한 미량금속의 1일섭취량(EDI) 및 주간섭취량(EWI)을 계산하여 노출평가를 실시하고, 노출량의 안전성을 평가하기 위하여 연합국제식품규격위원회(JCFCA)에서 권고하는 각 미량금속의 잠정 주간 섭취허용량(PTWI) 및 1일 최대 섭취 한계량(PMTDI)과 비교하여 평가하였다. PTWI란 인체 축적성이 있는 오염물질에 대한 1주일 단위의 섭취한계량이며, PMTDI는 인체 축적성이 없는 오염물질에 대한 1일 단위 섭취한계량이다. 그리고 대상어류에 함유된 미량금속의 평생 섭취로 인해 인체에 유발될 수 있는 위험을 정량적으로 평가하기 위하여 용량-반응평가를 실시하여 비발암독성위해도(HI) 및 생애발암위해도(LCR)를 산출하고 위해도를 결정하였다.

3.2.1. 노출평가

노출평가를 위하여 2012년 식품수급표의 각 어류 별 섭취량을 반영하여 노출평가를 실시하였으며 분석된 4가지 어류의 총 섭취량은 1인 1일당 5.75 g이었다(Table 1). 분석된 각 4종의 어류에서 분석된 미량금속의 농도를 근거로 하여

Table 3. Estimated daily intake, estimated weekly intake of trace metals from fishes collected from the offshore of Yongho wharf in Busan and PTWI and PMTDI of trace metals by FAO/WHO

	Li	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
EDI ^{a)} (μg/kg·bw-day)	1.3,E-04	1.1,E-02	1.9,E-02	1.6,E-02	5.4,E-01	2.7,E-01	8.3,E-06	6.1,E-04
EWI ^{b)} (μg/kg·bw-week)	9.0,E-04	7.8,E-02	1.3,E-01	1.1,E-01	3.8	1.9	5.8,E-05	4.3,E-03
PMTDI (μg/kg·bw-day)	-	-	-	500	300-1000	-	-	-
PTWI (μg/kg·bw-week)	-	-	-	-	-	15	7	25
% PMTDI ^{c)}	-	-	-	0.0032	0.054-0.18	-	-	-
% PTWI ^{d)}	-	-	-	-	-	13	0.0041	0.020

^{a)} Estimated Daily Intake of trace metals

^{b)} Estimated Weekly Intake of trace metals

^{c)} % PMTDI = EDI/PMTDI * 100

^{d)} % PTWI = EWI/PTWI * 100

섭취량에 따른 노출평가를 실시하였으며 결과를 Table 3에 나타내었다.

용호부두 인근에서 채취된 넙치, 우럭, 쥐치, 밀달갱이의 총 섭취에 의한 개인의 Li, Cr, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Pb의 1 일 인체 노출량(60 kg 성인 기준)은 각각 1.3.E-04, 1.1.E-02, 1.9.E-02, 1.6.E-02, 5.4.E-01, 2.7.E-01, 8.3.E-06, 6.1.E-04 μg/kg·bw-day였으며 Zn > As > Ni > Cu > Cr > Pb > Li > Cd 순이었다. PMTDI 값과 비교한 결과 분석된 어류를 통한 Cu, Zn의 1인 1일 섭취량은 PMTDI의 0.0032, 0.054-0.18%로 나타났으며, As, Cd, Pb의 섭취량은 각각 PTWI값의 13, 0.0041, 0.020%로 FAO/WHO에서 정한 섭취한계량을 크게 밑돌았다. 본 결과로 볼 때 우리나라 국민이 용호만 인근에서 잡히는 4종의 저서어류 섭취를 통하여 하루 및 일주일에 노출되는 Cu, Zn, As, Cd, Pb의 양은 안전한 수준인 것으로 나타났다.

3.2.2. 용량-반응평가 및 위험도 결정

용호만에서 채취된 어류의 장기적인 섭취로 인한 위험도를 결정하기 위하여 각 미량금속의 노출에 대한 비발암(독성)위해도(THQ)와 위해성이 있는 모든 미량금속의 노출에 의한 비발암독성위해도(HI)를 평가하였으며 결과를 Table 4에 나타내었다. 일반적으로 비발암독성위해도 수치가 1.0 미만인 경우에는 독성이 발생할 가능성이 없는 것으로 간주한다. 연구결과 용호부두 인근해역에서 채취되는 넙치, 우럭, 쥐치, 밀달갱이의 섭취에 의한 THQ는 Li, Cu, Zn, As, Cd모두 1.0보다 매우 낮은 수준으로 독성 발생 가능성이 매우 낮은 것으로 나타났다. 조사된 모든 4가지 어류의 섭취에 의한 HI (9.2.E-04)역시 1.0 미만으로 독성발생 가능성이 매우 낮았으며, 조사된 미량금속들의 상대적인 위험도는 As > Zn > Cu > Li > Cd 순으로 나타났다. HI는 넙치, 우럭, 쥐치, 밀달갱이가 각각 3.4E-07, 1.7E-07, 1.8E-06, 9.2E-09로 나타나 상대적으로 쥐치가 미량금속 섭취로 인한 비발암(독성)위해도가 가장 높은 것으로 나타났다. 이 결과는 Choi²²⁾의 용호부두 인근에서 채취된 어류에 함유된 PCBs 및 유기염소계 농약의 섭취로 인한 비발암위해도의 경향과 일치하였다.

Table 4. Target hazard quotients (THQ), hazard indices (HI) of the trace metals in fish collected in the offshore of Yongho wharf, Busan, Korea and oral reference dose (RfDo) of the trace metals

Species	THQ					HI
	Li	Cu	Zn	As	Cd	
<i>P. olivaceus</i>	1.5E-08	6.2E-08	2.6E-07	1.5E-04	8.3E-09	3.4E-07
<i>S. schlegelii</i>	0.0E+00	2.7E-08	1.5E-07	9.5E-05	0.0E+00	1.7E-07
<i>S. cirrhifer</i>	4.9E-08	3.1E-07	1.4E-06	6.6E-04	0.0E+00	1.8E-06
<i>L. abyssalis</i>	6.8E-10	1.8E-09	6.7E-09	7.1E-06	0.0E+00	9.2E-09
Total	6.4E-08	4.1E-07	1.8E-06	9.1E-04	8.3E-09	9.2E-04
RfDo (mg/kg-day)	2.0E-03 ^{a)}	4.0E-02 ^{b)}	3.0E-01 ^{b)}	3.0E-04 ^{b)}	1.0E-03 ^{b)}	

^{a)} PPRTV: Provisional Peer Reviewed Toxicity Values derived by EPA's Superfund Health Risk Technical Support Center (STSC)

^{b)} IRIS: Integrated Risk Information System of US EPA

Table 5. Lifetime cancer risk of As in fish collected from the offshore of Yongho wharf in Busan

	<i>P. olivaceus</i>	<i>S. schlegelii</i>	<i>S. cirrhifer</i>	<i>L. abyssalis</i>	Total
Lifetime cancer risk	7.0E-08	4.3E-08	3.0E-07	3.2E-09	4.1E-07

US EPA의 IRIS 데이터 베이스에 의하면 미량금속 중에서 As만 인체 발암 잠재력 값이 산정되어 있어, 본 연구에서는 As의 섭취에 의한 생애발암위해도(LCR)만 평가하였다. As의 섭취로 인한 발암잠재력(CSF₀) 수치인 1.5 mg/kg-day을 이용하여 LCR을 산출하였으며 결과를 Table 5에 나타내었다. 조사된 어류 4종의 섭취로 인한 전체 LCR은 4.1E-07 (1천만명당 41명)으로 US EPA에서 제시하는 허용위해도인 1.0E-5 (1십만명당 1명)보다 매우 낮아 발암위험으로부터 안전한 것으로 판단되었다.

4. 결론

본 연구에서는 오염과 악취로 2009년에서 2012년 사이 퇴

적물 정화사업이 이루어진 부산의 용호부두인근에서 주로 잡히는 식용어류 4종 35마리를 대상으로 조직(근육) 내의 미량금속의 분석을 통해 오염 정도를 파악하였다. 어류 조직 중 Li, Cr, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Pb의 0.005 ± 0.009 , 0.77 ± 0.30 , 0.29 ± 0.34 , 0.49 ± 0.14 , 15.96 ± 2.52 , 10.62 ± 4.67 , 0.001 ± 0.002 , 0.045 ± 0.06 mg/kg dw으로 나타났으며 다른 연구에서 분석된 결과들과 유사한 값을 보였다. 용호부두 인근 어류의 미량금속 함량은 분석결과를 토대로 이 해역에서 채취된 어류섭취를 통한 미량금속의 인체 노출량 산출 및 인체위해성 평가를 실시하였다. 노출평가 결과를 FAO/WHO에서 제시하는 PTWI, PMTDI와 비교한 결과 Cu, Zn은 PMTDI의 0.0032, 0.054-0.18%, As, Cd, Pb는 PTWI값의 13, 0.0041, 0.020%로 대상어류를 통한 Cu, Zn, As, Cd, Pb의 섭취수준은 인체건강에 안전한 수준인 것으로 나타났다. 대상어류의 장기적으로 섭취하였을 때 모든 미량금속의 노출에 의한 비발암독성위해도(HI)는 4종의 어류에서 모두 1.0 미만으로 평가되어 독성발생 가능성이 매우 낮은 것으로 나타났다. 조사된 4가지 어류를 모두 섭취하였을 때 이들 중 함유된 As의 섭취로 인한 생애발암위해도(LCR)는 1천만명당 41명으로 산출되어 US EPA에서 제시한 허용발암위해도인 '10만명당 1명'을 초과하지 않아 평생을 섭취하여도 발암위험이 거의 없는 것으로 나타났다.

그러므로 연구된 해역에서 잡히는 넙치, 우럭, 쥐치, 밑달갱이는 미량금속 오염에 안전한 수산물인 것으로 사료된다. 어류체내의 금속함량은 종과 계절변화에 많은 영향을 받기도 하며, 서식형태의 차이, 서식지 환경변화에 따라 계속 변화될 수 있다. 그러므로 연구대상해역의 해양오염퇴적물 정화사업의 경과와 이에 따른 환경변화, 그리고 이 해역에서 서식하는 수산물 체내의 오염물질 변화 및 안전성평가에 대한 지속적인 연구가 필요하다. 또한 해양오염퇴적물 수거(준설) 시 발생할 수 있는 퇴적물 재부유, 공극수 유출이 주변 생물에 미량금속 노출 증가를 유발할 수 있으므로, 앞으로 해양오염퇴적물 정화사업을 실시할 경우 사업 전, 후의 환경변화뿐만 아니라 이로 인한 주변생물 체내의 미량금속 변화에 대한 추적, 평가 역시 필요할 것으로 판단된다.

Acknowledgement

본 연구는 해양수산부의 재원으로 한국해양과학기술진흥원의 지원(지속가능 해양오염퇴적물 정화기술개발: 피복 및 현장처리기술, PM 58230)을 받아 수행 되었기에 저자들은 관계자 여러분들께 감사를 드립니다.

KSEE

References

1. Thornton, M. and Walsh, J. N., A handbook of inductively coupled plasma spectrometry, 2nd ed, Blackie, Glasgow and

- London, p. 501(1983).
2. Alloy, B. J., Heavy metals in soils, Blackie and Son Ltd., UK(1983).
3. Marin, B., Valladon, M., Polve, M. and Monaco, A., "Reproducibility testing of a sequential extraction scheme for the determination of trace metal speciation in a marine reference sediment by inductively coupled plasma-mass spectrometry," *Anal. Chim. Acta.*, **342**, 91~112(1997).
4. Petronio, B. M., Pietrantonio, M., Pietroletti, M. and Cadellicchio, N., "Environmental science and pollution research," In proceedings Seventh FECS Conference, Metal speciation and bio-availability in marine sediments of Northern Adriatic sea, p. 320(2000).
5. Morel, F. M. M. and Price, N. M., "The biogeochemical cycles of trace metals in the oceans," *Science*, **300**, 944~947(2003).
6. Hirose, K., "Chemical speciation of trace metals in seawater: a review," *Anal. Sci.*, **22**, 1055~1061(2006).
7. FAO (Food and Agriculture Organization of the United Nations), 1961-2007, Fish and Fishery Products World Apparent Consumption Statistics Based on Food Balance Sheets (2010).
8. Kim, H. Y., Kim, J. C., Kim, J. H., Jang, Y. M., Lee, M. S., Park, J. S. and Lee, K. H., "Monitoring of heavy metals in fishes in Korea-As, Cd, Cu, Pb, Mn, Zn, Total Hg-," *Korean J. Food Sci. Technol.*, **39**(4), 353~359(2007).
9. KREI (Korean Rural Economic Institute), Sheet Korea Food Balance 2012, Seoul, Korea, p. 12(2013).
10. Won, E. J., La, K. T., Hong, S. J., Kim, K. T., Lee, J. S. and Shin, K. H., "Effect of Trace Metal on Accumulation and Physiological Response of the Polychaete, *Perinereis nuntia*," *J. Korean Soc. Mar. Environ. Eng.*, **13**(4), 288~295 (2010).
11. WHO (World Health Organization), Arsenic, Environmental Health Criteria No. 18, WHO, Geneva(1989).
12. WHO (World Health Organization), Lead, Environmental Health Criteria No. 175, WHO, Geneva(1995).
13. WHO (World Health Organization), Mercury, Environmental Health Criteria No. 18, WHO, Geneva(1989).
13. WHO (World Health Organization), Cadmium, Environmental Health Criteria No. 135, WHO, Geneva(1992).
15. Sho, Y. S., Kim, J. S., Chung, S. Y., Kim, M. and Hong, M. K., "Trace metal contents in fishes and shellfishes and their safety evaluations," *J. Korean Soc. Food Sci. Nutr.*, **29** (4), 549~554(2000).
16. Codex Alimentarius Commission, Draft Report of the 38th Session of the Codex Committee on Food Additives and Contaminants. ALINORM 06/29/41, Hague, Netherlands(2006).
17. Lee, J. S. and Chon, H. T., "Human risk assessment of toxic heavy metals around abandoned metal mine sites," *Econ. Environ. Geol.*, **37**(1), 73~86(2004).
18. Choi, M. K., Moon, H. B. and Choi, H. G., "Intake and potential health risk of butyltin compounds from seafood consumption in Korea," *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, **62**, 333~340(2012).

19. Moon, H. B. and Ok, G., "Dietary intake of PCDDs, PCDFs and dioxin-like PCBs, due to the consumption of various marine organisms from Korea," *Chemosphere*, **62**, 1142~1152 (2006).
20. Moon, B. H., Park, B. K. and Kim, H. S., "Human health risk of chlorobenzenes associated with seafood consumption in Korea," *Toxicol. Environ. Health Sci.*, **1**(1), 49~55(2009).
21. Choi, J. Y., Yang, D. B., Hong, G. H. and Shin, K. H., "Distribution and bioaccumulation of polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides residues in sediments and Manila clams (*Ruditapes philippinarum*) from along the Mid-Western coast of Korea," *Mar. Pollut. Bull.*, **85**, 672~678(2014).
22. Choi, J. Y., Yang, D. B., Hong, G. H., Kim, S. H., Chung, C. S. and Cho, K. D., "Potential human risk assessment of PCBs and OCPs in edible fish collected from the offshore of Busan," *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, **34**(12), 810~820 (2012).
23. Lee, J. S. and Chon, H. T., "Risk assessment of arsenic by human exposure of contaminated Soil, groundwater and rice grain," *Eco. Environ. Geol.*, **38**(5), 535~545(2005).
24. Lee, J. S., Kwon, H. H., Shim, Y. S. and Kim, T. H., "Risk assessment of heavy metals in the vicinity of the abandoned metal mine areas," *J. Soil Groundwater Environ.*, **12**(1), 97~102(2007).
25. Jun, J. Y., Xu, H. M. and Jeong, I. H., "Heavy metal contents of fish collected from the Korean coast of the East Sea (Dong Hae)," *J. Korean Fish. Soc.*, **40**(6), 362~366(2007).
26. Yang, D. B., Hong, G. H. and Kim, K. R., "Potential human health and fish risks associated with hypothetical contaminated sediments using a risk assessment model (Trophic Trace[®])," *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, **33**(1), 60~70(2011).
27. NRC (National Research Council)/NAS (National Academy of Sciences), "Risk Assessment in the Federal Government: Managing the process," National Academy Press, Washington (1983).
28. US EPA Integrated Risk Information System (IRIS), <http://www.epa.gov/iris/>, Accessed 1 June(2015).
29. US EPA, "Guidance for Assessing Chemical Contaminant Data for Use in Fish Advisories Volume 2 Risk Assessment and Fish Consumption Limits Third Edition," EPA 823-B-00-008, pp. 1~383(2000).
30. Pérez-Granados, A. M. and Vaquero, M. P., "Silicon, aluminum, arsenic and lithium: essentiality and human health implications," *J. Nutr. Health Aging*, **6**(2), 154~162(2002).
31. NIFDS (National Institute of Food and Drug Safety Evaluation), <http://www.nifds.go.kr/>, Accessed 1 June(2015).
32. Hwang, Y. O. and Park, S. G., "Contents of heavy metals in marine fishes, sold in Seoul," *Anal. Sci. Technol.*, **19**(4), 342~351(2006).
33. Islam, M. S., Ahmed, M. K., Md Habibullah-Al-Mamun, M. H. and Masunaga, S., "Assessment of trace metals in fish species of urban rivers in Bangladesh and health implications," *Environ. Toxicol. Pharmacol.*, **39**, 347~357(2015).
34. Chen, J. and Thilly, W. G., "Use of denaturing-gradient gel electrophoresis to study chromium-induced point mutations in human cells," *Environ. Health Perspect.*, **102**(3), 227~229 (1994).
35. Forti, E., Salovaara, S., Cetin, Y., Bulgheroni, A., Pfaller, R. W. and Prieto, P., "In vitro evaluation of the toxicity induced by nickel soluble and particulate forms in human airway epithelial cells," *Toxicol. In Vitro*, **25**, 454~461(2011).
36. Ichigawa, Y., "Contents of iron, zinc, and copper," *Food Sanitat. Res.*, **33**, 75~83(1983).
37. Licata, P., Trombetta, D., Cristani, M., Naccari, C., Martino, D., Calò, M. and Naccari, F., "Heavy metals in liver and muscle of bluefin tuna (*Thunnus thynnus*) caught in the Straits of Messina (Sicily, Italy)," *Environ. Monit. Assess.*, **107**, 239~248(2005).
38. Kim, Y. C. and Han, S. H., "A study on heavy metal contents of the fresh water fish, and the shellfish in Korea," *J. Food Hyg. Saf.*, **14**(3), 305~318(1999).
39. Choi, S. Y., Food Contamination, Ulsan University Publisher, Ulsan(1994).
40. FAO (Food and Agriculture Organization of the United Nations), Summary of evaluation performed by the joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives (JACFA), International Life Science Institute, Geneva, Switzerland(1994).
41. The Pharmaceutical Society of Japan, Standard Method of Analysis for Hygienic Chemists-with commentary, Kumwon Press, Tokyo, Japan(1983).
42. Reilly, C., Metal contamination of food, Blackwell Science Ltd. London, UK(2002).
43. Ham, H. J., "Distribution of Hazardous heavy metals (Hg, Cd, and Pb) in fishery products, sold at garak wholesale markets in Seoul," *J. Food Hyg. Saf.*, **17**, 146~151(2002).