

## 시판되는 각종 음료수내 불소 함량과 소아의 불소섭취에 관한 연구

서울대학교 치과대학 소아치과학 교실

이미나 · 이상훈 · 김종철

### Abstract

#### A STUDY ON THE FLUORIDE CONTENT OF THE COMMERCIALY AVAILABLE BEVERAGES AND THE FLUORIDE INTAKE OF CHILDREN

Mi-Na Lee, D.D.S., Sang-Hoon Lee, D.D.S. M.S.D. Ph.D.,  
Chong-Chul Kim, D.D.S. M.S.D. Ph.D.

*Dept. of Pediatric Dentistry, College of Dentistry, Seoul National University*

Along with recent economic prosperity, the consumption of commercially available beverages has increased dramatically. Beverages on the market are replacing tap water and constituting an increasing large proportion of the total daily fluoride intake.

If such changes in the source of fluid intake are not taken into consideration, effective fluoride intake would become difficult in the fluoridated area while there would be confusion as to the basis for proper fluoride supplement prescription in the nonfluoridated area. So, dietary consultation is recommended for every pediatric patient.

This study was conducted to provide the reference for dietary consultations on the subject of fluoride supplement using 72 beverages on the market. The fluoride content was measured and the fluoride intake from each age groups was calculated using fluoride ion specific electrode and HMDS-microdiffusion technique.

1. The average fluoride concentration of the 72 beverages was  $0.23 \pm 0.10$ ppm, from 0.0106ppm to 2.2050ppm.
2. Natural fruit juices, diluted fruit juices, carbonated beverages and mixed beverages showed average fluoride concentration of  $0.15 \pm 0.66$ ppm,  $0.09 \pm 0.11$ ppm,  $0.15 \pm 0.23$  ppm,  $0.50 \pm 0.66$ ppm, respectively. There were significant difference between diluted

\* 본 연구의 일부는 1996년도 서울대학교병원 지정진료 연구費 支援에 의해 이루어진것임.

fruit juice drinks and mixed beverage, and between the carbonated beverages and mixed beverages( $p < 0.05$ ).

- Using available data on the daily total consumption of beverages and the relative consumption of beverages on the market according to age, daily fluoride intake for various age groups was calculated. According to the results, 2 to 3 year-old children need 0.13mgF/day, those between 4 and 6 year-old need 0.15mgF/day, and those between 7 and 10 year-old need 0.17mgF/day.

Key words : Fluoride, Beverages, HMDS-microdiffusion, Fluoride ion specific electrode

## I. 서 론

불소는 지표에서 13번째로 풍부한 원소이며 자연 상태에서는 단독으로 존재하지 않고 다른 원소와 결합하여 화합물을 형성한다. 즉 불소는 곳곳의 바위, 토양속의 광물질로서 존재하여, 이 위를 지나는 물은 불소 화합물을 녹여내 불소이온을 함유하게 된다. 결과적으로 모든 물속에는 자연적으로 소량의 가용성의 불소이온이 포함되어 있다<sup>1,2)</sup>.

1900년대초 미국 Colorado주 Frederic McKay와 G. V. Black에 의해 음료수내 자연적으로 포함된 불소 화합물에 의해 어린이의 치아우식증이 감소됨이 보고되었다. 이를 바탕으로 많은 역학적 조사가 이루어져 음료수내 불소와 치아우식을 감소의 관계를 확립시켰으며, 최대의 우식 예방 효과를 가지면서 부작용을 일으키지 않는 음료수내 불소 농도가 1.0ppm이라는 결론을 얻었다. 1945년 1월 25일 Michigan주 Grand Rapids의 상수도수를 불소화시키는 것을 시작으로 하여 이후, 상수도수불소화지역과 비불소화지역에서 불소의 효과를 비교 조사하였다. 이를 바탕으로 세계 각지에서 상수도수불소화를 시도하고 있으며, 현재 세계 3억인구 약 30개국 이상에서 상수도수불소화 사업을 시행하고 있으며, 미국, 오스트레일리아, 브라질, 캐나다, 홍콩, 말레이시아, 러시아 등이 포함되며<sup>3)</sup>, 우리나라의 경우 1981년 진해시와 1982년 청주시를 비롯하여 1993년 과천시를 추가로 상수도수불소화사업을 시행하고

있다.

상수도수불소화사업이 안전하고도 경제적이면서 간편한 방법임에는 틀림없다. 그러나 널리 상수도수불소화가 이루어진 나라에서 최근 1940년대와 달리 불소화지역과 비불소화지역간의 우식감소율이 비슷함이 보고되었고<sup>4-7)</sup>, 이는 불소 공급원이 관급수외에 불소보조제, 구강함수제, 불소가 함유된 치약, 전문가불소도포<sup>8-10)</sup>, 불소화지역에서 가공된 음식물 혹은 음료수의 영향을 고려하여야 할 것이다<sup>11-16)</sup>. 특히 심미적으로 중요한 전치 형성시기에 이러한 불소 사용의 증가는 반점치 증가를 설명할 수 있을 것이다. 또한, 최근 반점치 증가율이 상수도수불소화지역에서보다 비불소화지역에서 더 크다는 보고도 있다<sup>7)</sup>.

미국소아치과학회(AAPD)나 미국치과의사협회(ADA)에서 제시한 불소 보조제 투여량 결정<sup>10)</sup>시 단순히 그 지역의 식수원의 불소 농도와 나이만을 고려하는 것은 이렇게 불소 노출의 가능성이 많은 오늘날에는 모순되는 일이다. 또한, 사람들이 점차 물에 대한 관심이 높아지면서 수돗물보다는 생수, 약수, 지하수, 혹은 정수기를 거친 물의 사용이 증가하였으며<sup>19)</sup>, 이 사실은 상수도수불소화사업의 효과를 의심케한다. 1993년 이<sup>20)</sup> 등은 특히 정수기를 사용한 경우 대부분의 불소가 소실된다고 보고하였고, 1993년 송<sup>21)</sup> 등은 청주시의 경우 62%만이 관급수를 주식수원으로 사용하고 있다고 보고하였다. 또한 최근 경제적으로 운택해지면서 시판음료의 소비가 괄목할 만큼 증가하

였으며 이는 시판음료를 통한 불소의 섭취가 일일 불소 섭취량의 짐차 큰 부분을 차지함을 함께 뜻하는바이다<sup>22-26)</sup>. 이러한 주 식수원의 변화를 고려하지 않고 전량의 불소보조제를 투여한다면 과량의 불소 섭취를 낳게 된다. 우리나라에서는 1971년 과학기술처<sup>27)</sup>에서 한국 식품과 식용수중 불소의 위생학적 연구에서 음용수내 불소 농도가 평균 0.31ppm임을 보고한적이 있고, 1978년 이<sup>28)</sup> 등은 음료수 및 지표수의 수중 성분을 조사하여 이 중 불소가 0.309 ppm임을 보고하였다. 1985년 김<sup>29)</sup> 등에 의해 식물성 식품과 음료중 불소 함량에 관한 보고에서 탄산음료는 0.13ppm, 기타 각종 음료는 0.09ppm이었으며 과일주는 0.42ppm으로 보고한 바 있고, 1995년 조<sup>30)</sup> 등의 연구에서 상수도수불소화사업을 위한 각지역별 음용수 즉 총 226개의 수돗물, 지하수, 약수, 온천수의 불소농도를 비교 조사한 바 있는데, 수돗물은 평균  $0.269 \pm 0.232$ ppm, 지하수는  $1.026 \pm 2.283$ ppm, 기존 약수 즉 천연수는  $0.782 \pm 2.024$ ppm, 온천수는  $8.80 \pm 8.021$ ppm으로 나타났으며, 시판생수는  $0.605 \pm 0.681$ ppm으로 보고되었다.

시판 음료수내 불소 농도에 대한 보고 자료가 미약하며 음료수의 종류도 그간 많이 변화하였으므로, 본 연구에서는 시판되는 72종의 음료수를 대상으로 불소 농도를 측정하여 이를 바탕으로 시판 음료수를 통한 소아의 일일 불소 섭취량을 계산하여, 불소보조제 투여시 식이상담 자료를 마련하고자 이 연구를 시행하였다.

## II. 연구 대상 및 방법

### 1) 연구 대상

총 72종의 시판 음료수를 대상으로 하였으며, 이중 천연과즙음료는 18종, 희석과즙음료 17종, 탄산음료 18종, 혼합음료 19종이었다.

### 2) 연구 방법

탄산음료의 경우 탄산 성분을 없애기 위하여 9시간 동안 음료수를 개봉시켜 두었으며, 과육 성분이 든 음료의 경우 거어저로 걸러서 사용하였다. Taves<sup>31, 32)</sup>에 의해 고안되었으며, Whit-

ford<sup>45)</sup>에 의해 변형된 HMDS(hexamethydisiloxane)을 이용한 확산 방법으로 시료를 처리한 후, 불소 이온 전극 (Orion, 96-09)을 이용하여 측정하였다.

플라스틱 nonwetable petri dish의 뚜껑에 제품에 부여한 번호를 표시한 후, 1ml의 시료와 2ml의 증류수를 넣은 후, 뚜껑의 가장자리를 바세린으로 이장하여 나중에 sealing될 수 있도록 한다. 뚜껑의 안쪽에 0.05N NaOH 50 $\mu$ l를 떨어뜨리고 뚜껑을 방울이 흐트러지지 않게 조심스럽게 덮어 closed unit이 되도록 한다. 작은 전기 인두를 이용하여 뚜껑에 1-2mm의 구멍을 뚫어 이곳을 통하여 미리 만들어 놓은 3N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-HMDS 포화 용액 2ml을 넣은 후 즉시 바세린으로 구멍을 다시 막는다. 조심스레 petri dish를 흔들어 내용물을 섞은 후 상온에서 12-16시간 동안 확산시킨다.

분석은 25 $\mu$ l의 0.15N acetic acid와 증류수를 NaOH trapping에 첨가하여 100 $\mu$ l이 되도록 한후, 불소이온 전극(Orion, 96-09)을 pH/Ion/Conductivity Meter에 연결하여 mV를 측정한다. 100ppm 표준용액을 이용하여 불소 표준 용액을 희석하여 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 1, 2, 3, 4ppm을 만든 후 시료와 동일한 방법으로 처리하여 불소 이온 전극하에서 농도와 mV의 표준 그래프를 작성하여 이를 이용하여 불소 농도를 환산한다.

각 실험은 한 제품에 대해 4회씩 반복하였으며, 평균치, 표준편차, 유의차 등을 SPSS 통계 프로그램을 이용하여 처리하였다. 음료수 군간의 비교는 비모수통계법인 Kruskal-Wallis 1-way ANOVA 및 Mann-Whitney U test를 이용하였다.

## III. 연구 성적

### 1) 천연과즙음료

시판음료중 천연과즙음료로 오렌지쥬스가 5종, 사과쥬스 4종, 포도쥬스 2종, 혼합 쥬스 1종으로 총 18종이었으며, 평균  $0.15 \pm 0.10$  ppm, 최소 0.01061ppm, 최대 0.3128ppm이었다. 이 중 상품명은 같으나 제조 공장이 다른

경우 제품 5와 6, 제품 8과 9가 있었는데 별 차이가 없었다. 또한 동일 상품을 동일 공장에서 제조한 경우라도 용기가 다른 경우는 제품 1과 2, 4와 6, 7과 9였으며 유의한 차이를 발견할 수 없었다( $p>0.05$ ). 포도주스의 평균 농도는 0.26ppm으로 비포도주스 0.09ppm보다 높았지만 통계적으로 유의한 수준은 아니었다( $p>0.05$ ). 오렌지주스는 평균  $0.07 \pm 0.06$ ppm, 사과주스는 평균  $0.09 \pm 0.06$ ppm, 포도주스는 평균  $0.26 \pm 0.07$ ppm, 당근주스는  $0.17 \pm 0.01$ ppm이었다(Table 1, Figure 1 참조).

### 2) 희석과즙음료

평균 불소 농도는  $0.09 \pm 0.11$ ppm, 최대 0.4130ppm, 최소 0.0134ppm 였다(Table 2, Figure 2 참조).

### 3) 탄산음료

평균 불소농도  $0.15 \pm 0.23$ ppm, 최대 1.0620

ppm, 최소 0.0128ppm이었다. 제품 3을 제외하고는 모두 0.2ppm이하의 낮은 불소 농도를 보였다 (Table 3, Figure 3 참조).

### 4) 혼합음료

평균 불소 농도  $0.50 \pm 0.66$ ppm, 최대 2.2050ppm, 최소 0.01270ppm이었다. 홍차류 3종 평균  $0.67 \pm 0.43$ ppm, 커피류 2종 평균  $0.07 \pm 0.07$ ppm, 식혜류 5종 평균  $0.81 \pm 0.85$ ppm, 이온음료류 5종 평균  $0.13 \pm 0.10$ ppm, 기타 음료 3종 평균  $0.67 \pm 0.98$ ppm의 불소 농도로 총 19종이었다. 예상대로 홍차류에 불소 농도가 높았으며, 식혜류의 경우도 상당히 높았다. 식혜류의 경우 제품 3을 제외하고 판매사와 제조사가 달랐다. 2ppm을 넘는 두 음료의 경우 동일한 공장에서 제조되었다(Table 4, Figure 4 참조).

Table 1. Fluoride Concentration of Natural Fruit Juices

No.	Classification	Factory	Container	Mean(ppm) †	S.D.(ppm)
1	Orange	F1	metal	0.0601	0.0001
2	Orange	F2	glass	0.1074	0.1131
3	Orange	F2	glass	0.1080	0.2150
4	Apple	F2	glass	0.1575	0.0405
5	Apple	F3	metal	0.0388	0.0043
6	Apple	F2	metal	0.0359	0.0203
7	Grape	F2	glass	0.2650	0.0254
8	Grape	F3	metal	0.3011	0.1248
9	Grape	F2	metal	0.3128	0.1215
10	Carrot	F8	metal	0.1608	0.0143
11	Orange	F4	glass	0.0287	0.0186
12	Apple	F5	glass	0.1245	0.0150
13	Orange	F6	metal	0.0378	0.0198
14	Grape	F6	metal	0.1363	0.0176
15	Grape	F9	glass	0.3033	0.0097
16	Carrot	F10	glass	0.1698	0.0208
17	mixed fruit	F11	glass	0.2168	0.0134
18	Orange	F11	glass	0.1500	0.0075

† Values given are means of four times analyses

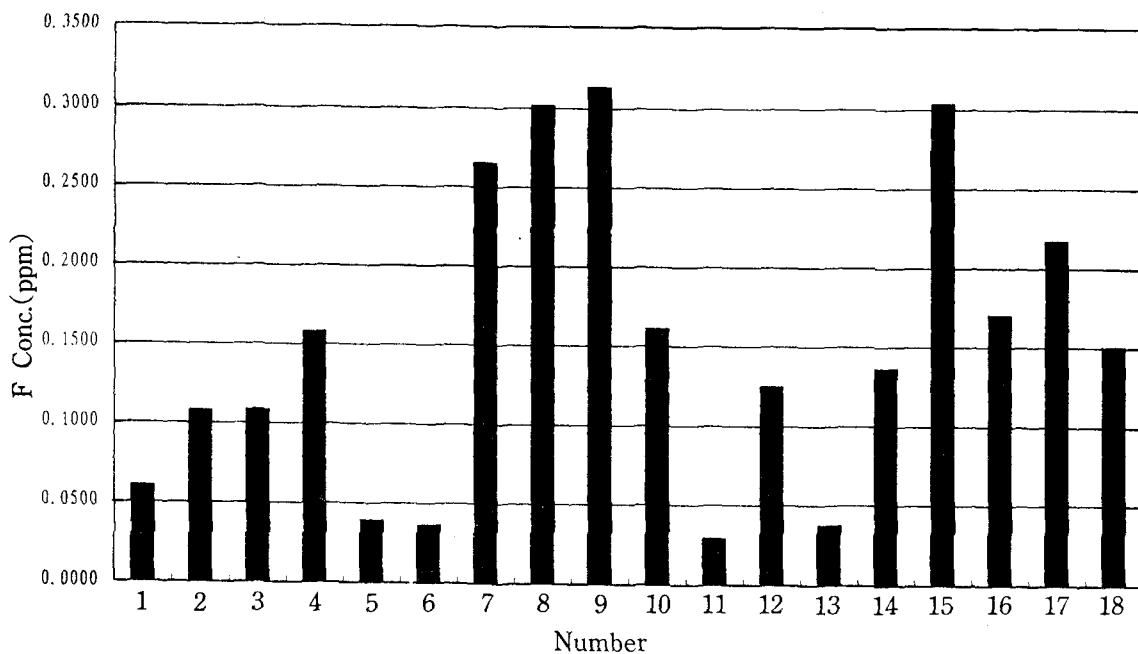


Figure 1. Fluoride Concentration of Natural Fruit Juices

Table 2. Fluoride Concentration of Diluted Fruit Juices

No.	Factory	Container	Mean(ppm) †	S.D.(ppm)
1	F7	metal	0.0489	0.0115
2	F6	glass	0.0184	0.0064
3	F5	metal	0.1198	0.0075
4	F7	metal	0.0423	0.0091
5	F6	metal	0.0239	0.0089
6	F7	metal	0.4130	0.0211
7	F5	glass	0.1208	0.0195
8	F2	metal	0.2190	0.0230
9	F1	metal	0.1170	0.0145
10	F1	metal	0.0214	0.0095
11	F2	metal	0.0245	0.0096
12	F12	metal	0.0311	0.0042
13	F12	metal	0.0288	0.0191
14	F12	metal	0.0401	0.0348
15	F13	metal	0.2230	0.0093
16	F14	glass	0.1015	0.0143
17	F15	glass	0.0134	0.0020

† Values given are means of four times analyses

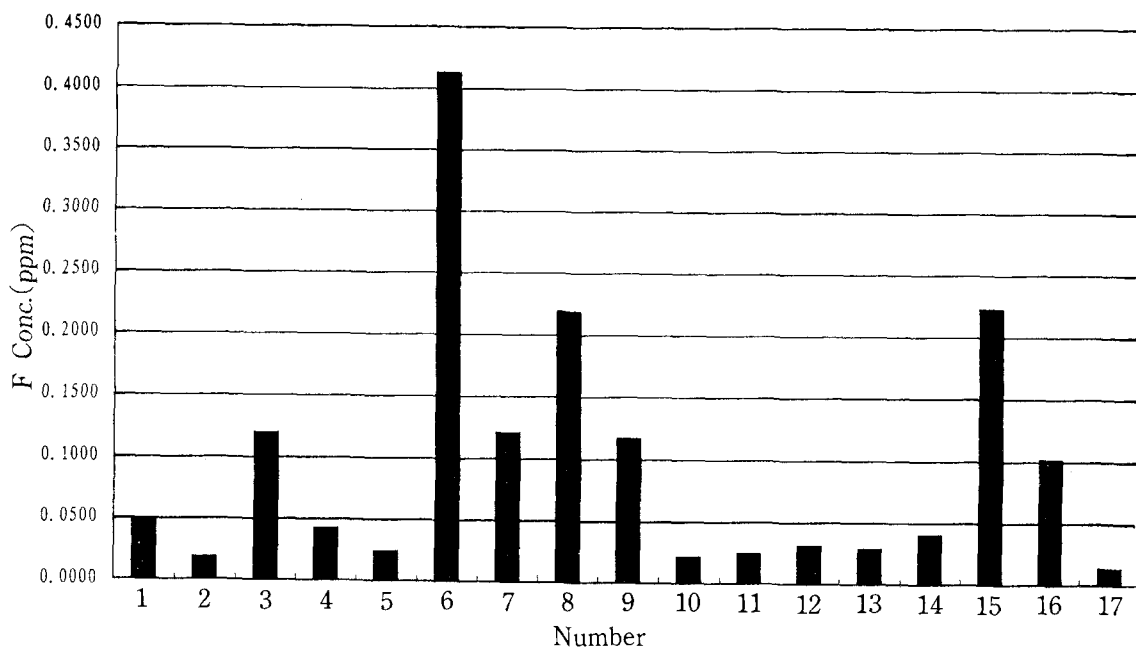


Figure 2. Fluoride Concentration of Diluted Fruit Juices

Table 3. Fluoride Concentration of Carbonated Beverages

No.	Factory	Container	Mean(ppm) †	S.D.(ppm)
1	F16	metal	0.0436	0.0029
2	F2	metal	0.1014	0.0255
3	F3	metal	1.1062	0.0868
4	F3	metal	0.1200	0.0113
5	F2	metal	0.1298	0.0250
6	F3	metal	0.0128	0.0019
7	F11	metal	0.1075	0.0207
8	F11	metal	0.1279	0.0104
9	F11	metal	0.1608	0.0150
10	F11	metal	0.1265	0.0175
11	F11	metal	0.0795	0.0231
12	F11	metal	0.0968	0.0141
13	F6	metal	0.0960	0.0101
14	F17	metal	0.0722	0.0182
15	F17	metal	0.0590	0.0197
16	F17	metal	0.0843	0.0291
17	F17	metal	0.0693	0.0095
18	F18	glass	0.0728	0.0202

† Values given are means of four times analyses

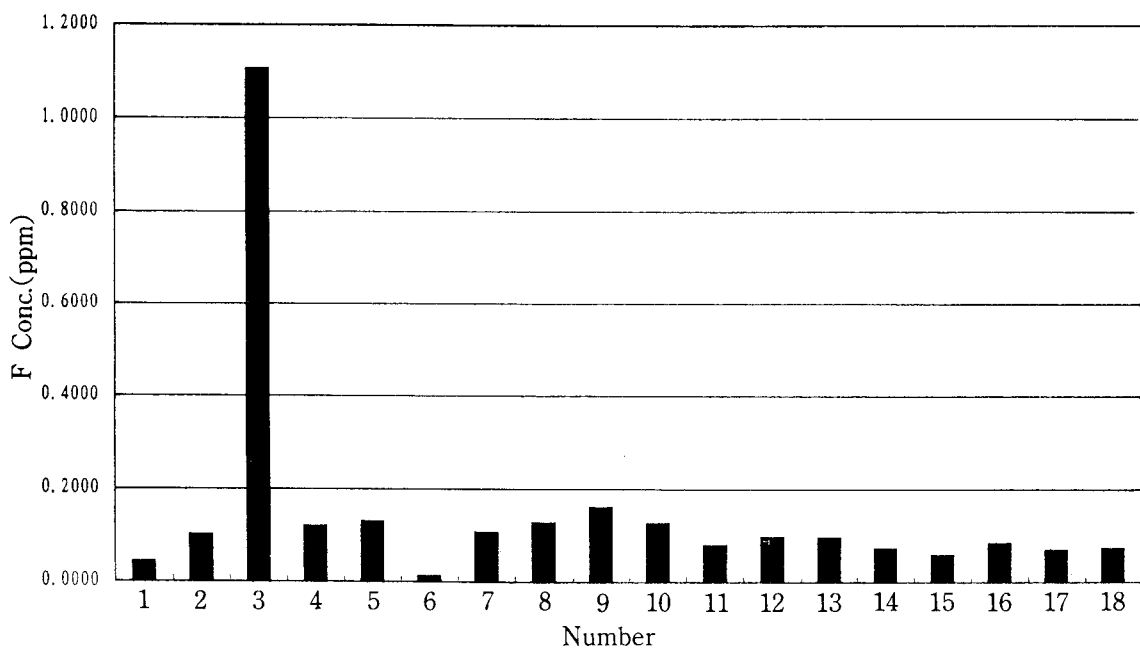


Figure 3. Fluoride Concentration of Carbonated Beverages

Table 4. Fluoride Concentration of Mixed Beverages

No.	Classification	Factory	Container	Mean(ppm) †	S.D.(ppm)
1	teas	F3	metal	0.7238	0.0464
2	coffees	F3	metal	0.0228	0.0018
3	sikhes	F1	metal	0.0532	0.0321
4	ion drinks	F3	metal	<0.0127 ‡	.
5	teas	F11	metal	1.1071	0.1041
6	coffees	F11	metal	0.1260	0.0195
7	sikhes	F19	metal	2.2050	0.1370
8	ion drinks	F11	metal	0.1092	0.0372
9	ion drinks	F11	metal	0.1438	0.0089
10	teas	F7	metal	0.2195	0.0148
11	sikhes	F20	metal	0.7915	0.0998
12	others	F24	metal	0.2773	0.0165
13	ion drinks	F24	metal	0.2830	0.0126
14	ion drinks	F17	metal	0.0839	0.0195
15	others	F18	glass	0.0212	0.0044
16	sikhes	F22	metal	0.2018	0.0236
17	sikhes	F21	metal	0.8095	0.0810
18	others	F19	metal	2.1350	0.2034
19	others	F23	metal	0.2540	0.0074

† Values given are means of four times analyses

‡ Electrode could not detect the value three times because of the lower limit of sensitivity of the technique ( $10^{-2}$  ppm).

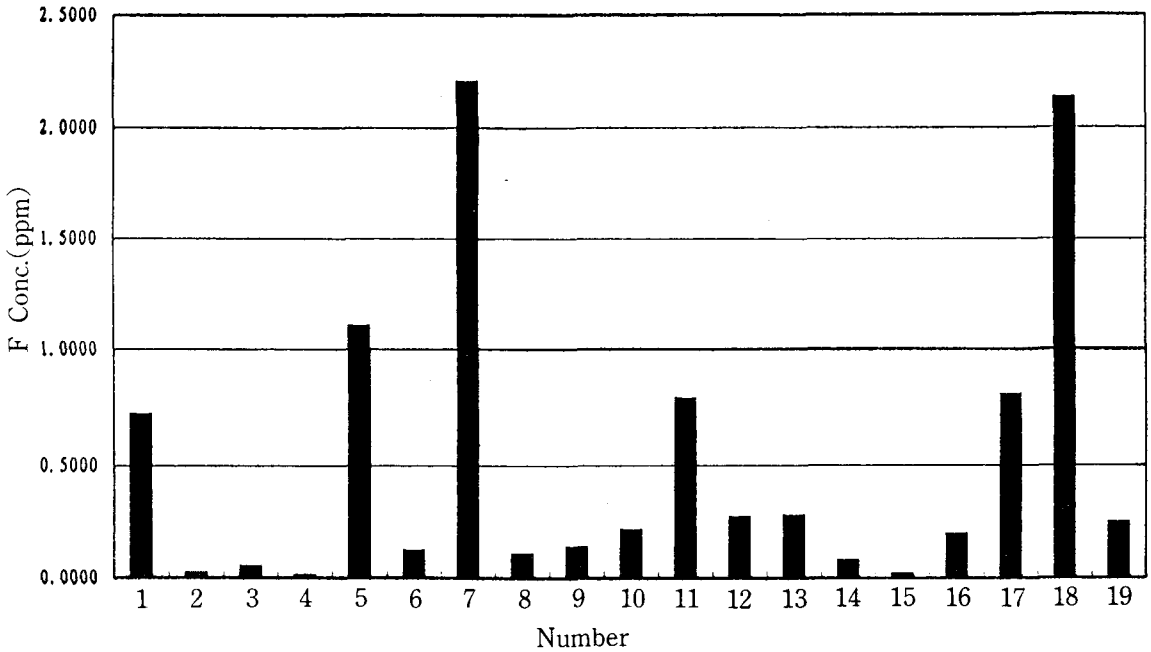


Figure 4. Fluoride Concentration of Mixed Beverages

#### IV. 총괄 및 고안

불소화된 물과는 달리 음식 및 음료내 불소는 이온 및 비이온 형태 모두 존재하며, 체액 및 조직도 마찬가지로 이 두가지 형태의 불소를 함유하고 있다<sup>33-37</sup>. 이온 및 비이온 형태의 비율은 불소의 함량, 고형음식이나 음료의 성질, 섭취후 지난 시간 등과 같은 요소에 영향을 받는다<sup>38</sup>. 물 속의 이온 형태의 불소는 불소 이온 전극으로 측정이 가능하나 음식물 및 음료내 부착된 비이온 형태의 불소는 분리가 쉽지 않아 여러 방법이 소개되고 있다<sup>39</sup>. 불소 이온 전극의 Colorimeter도 1960년대 이전까지 널리 사용되었는데 현재 많은 문헌에서 이 방법으로 음식물의 불소를 측정시 방해물질 존재로 인한 불소함량 과다 측정이 보고되고 있다<sup>36, 40-42</sup>. 불소 이온 전극은 농도 자체보다는 이온의 활동도에 반응을 하므로 적정 pH로 완충이 필요하며, 전극의 민감도 한계가  $10^{-6}M$ 로서 이것보다 더 낮은 농도의 시료를 측정시 불소를 농축 확산시키는 것이 필요하다. 더욱이 시료의 단백질이나 알루미늄 이온 등에 의한 간섭을 이

확산법을 이용하면 피할 수 있다. 그러나 산에 의해 이온 형태로 전환될 수 없는 부분은 확산 방법으로도 측정하기가 곤란하고 소각시킨 후에야 측정이 가능하다고 하였다<sup>43</sup>. 이런 형태의 불소는 그 흡수, 대사, 역할에 대해 아직 잘 알려지지 않았으며, 체내에서 흡수되는 것은 이온화되어 있거나 산에 의해 이온화 될 수 있는 부분으로 알려져 있다<sup>44</sup>. 이번 실험에서는 Taves<sup>31, 32</sup>에 의해 고안되었으며 Whitford와 Reynold<sup>45</sup>에 의해 변형된 hexamethyldisiloxane (HMDS)를 이용한 불소의 미세 확산법으로 음료수내 불소 농도를 측정하였으며, 우유내 불소농도가 매우 낮게 존재한다는 많은 보고<sup>46-49</sup>를 참고로 이번 실험에서 제외시켰다.

음료수 종류마다 다양한 불소 농도를 나타내었는데, Adair와 Wey<sup>50</sup>는 주스내 불소농도에 영향을 주는 요소로 육성되는 토양의 성질, 공기 오염 및 살충제 오염, 그리고 주스 제조 과정에 사용되는 물속의 불소 함량을 들었다. 그외 인산 비료를 사용하는 경우 인산 비료 생산 공정에서 부산물로 sodium silicofluoride가 형성되므로 이 또한 과즙음료 등의 불소 농도에 영향을 줄



수 있다고 보고되었다<sup>29)</sup>. Stannard<sup>51)</sup> 등은 포도주스내 불소 농도가 높음을 보고하였고 불소가 포함된 살충제의 사용이 가능한 원인이라 지적하였다. 또한 Almedia<sup>52)</sup>는 포도주에 3.0-5.0 ppm의 고농도 불소함량을 보고하였는데 이는 포도주 저장조 소독시 불화 소다 사용이 원인으로 알려진 바 있다. Anna Enno<sup>53)</sup> 등은 금속 용기와 유리 용기에 따른 불소 농도 변화를 측정하였는데 음료를 각기 용기에 담아 보관 후 4개월 뒤에 농도를 측정한 결과 유리 용기의 음료수내 불소 농도는 변함이 없었으나 금속 용기의 경우 원 음료수의 불소 30%가 감소하였다고 보고하였다. 또한 금속 용기내 음료수 평균 불소 농도가 유리 용기보다 유의성있게 낮았음을 보고한 바 있어 이번 실험결과에서 금속 용기와 유리 용기내 음료수의 평균 불소 농도를 비교해본 결과 그 유의성을 발견할 수 없었다( $p>0.05$ ).

원수와 제품의 불소농도와의 관계에 대해서 Shannon<sup>54)</sup>은 72개의 탄산음료내 평균 불소 농도가 이를 제조하는 수돗물속의 불소 89%를 함유한다고 하였다. 이처럼 불소 농도가 낮아지는 이유로 시립 첨가에 의한 희석효과와 수돗물의 정제 과정을 들고 있다. 우리 나라 많은 음료수 공장에서 사용하는 정제과정은 공장마다 상이하였지만 일반적인 처리 공정<sup>54,55)</sup>으로 먼저 원수에  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ,  $\text{FeSO}_4$ ,  $\text{OCI}^-$  등이 첨가되어 먼저, 탁도, 세균, 용해된 유기물 내지 무기물 등을 급속 침전시킨 후, 모래 여과기를 거쳐 유기물 처리를 하며, 다음 활성탄 여과기를 거치는데 이는 탄소의 불순물 흡착효과를 이용한 것으로 맛, 냄새, 염소, 중금속 및 유기물을 어느 정도 제거하는 역할을 한다. 이후 공장마다 이온교환수지, cartilage paper filter 등을 사용하기도 한다. 1993년 이<sup>20)</sup> 등의 연구에서 활성탄 여과기를 통과하는 경우  $71 \pm 6\%$ 의 불소농도가 감소됨을 보고하였고, 이온 교환수지의 경우 물 속의 이온을 치환반응을 이용하여 제거하는 것으로 이에 의한 불소농도 변화는 일정치가 않다. 1972년 Full과 Parkins<sup>56)</sup>는 40% 정도의 불소농도 감소를 보고하였고 1980년 Groman<sup>57)</sup> 등은 유의할 만한 변화를 보이지

않았다고 보고하였다. 지속적인 연구에서 Full과 Wefel<sup>58)</sup>은 불소 농도에 유의할 만한 변화를 보이지 않았다고 하였다. 그외 물 처리과정중 Alum( $\text{KAl}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ ) flocculation은 사용되는 알루미늄 염이 불소와 결합하는 성질로 인해 이 과정을 거치는 경우 35%의 불소가 감소됨이 보고된 바 있다<sup>53)</sup>.

이번 실험 대상 천연과즙음료류에서 동일 상품명을 가지면서 공장이 다른 제품으로는 제품 5와 6이 각각 F1공장에서 0.0388ppm, F3공장에서 0.0359ppm, 제품 8과 9가 각기 F1공장에서 0.3015ppm, F3공장에서 0.3128ppm로서 그 차이가 발견되지 않았다. 이는 원수의 불소 농도가 극미량인 탓에 물보다는 원료에 영향을 더 많이 받는 것으로 보인다. 농도별 분포하는 음료수 종류는 표 5에서와 같다. 대부분 0.2ppm이하를 나타내었으며, 0.7ppm을 초과하는 음료수로는 탄산음료 1종, 혼합음료중 홍차류 2종, 식혜류 3종, 그외 미숫가루 1종으로 모두 7가지였다. 이 중 2종은 2ppm을 추가하였으며, 이 두 제품의 제조 공장은 F19공장으로 동일하였다. 홍차에 자연적 불소 함량이 높음은 주지하는 바이며, 식혜 및 미숫가루의 경우 곡류가 주원료로 우리 나라 쌀의

Table 5. No.(%) of samples according to the F concentration

Fluoride concentration (ppm)	No.(%) of samples
<0.1	30 (41.2)
0.1 - 0.2	22 (30.6)
0.2 - 0.3	9 (12.5)
0.3 - 0.4	3 (4.2)
0.4 - 0.5	1 (1.4)
0.5 - 0.6	0 (0)
0.6 - 0.7	0 (0)
0.7 - 0.8	2 (2.8)
0.8 - 0.9	1 (1.4)
0.9 - 1.0	0 (0)
1.0 - 2.0	2 (2.8)
>2.0	2 (2.8)
sum	72 (100)

경우  $1.67\mu\text{L}/\text{g}$ , 보리의 경우  $1.26\mu\text{L}/\text{g}$ 으로 상당히 높은 불소함량이 보고된 바<sup>59)</sup> 있어 원료에서 불소가 기인했을 가능성도 생각해 볼 수 있다. 탄산음료 제품 3과 혼합음료 제품 7에 대해 동일 공장 제조품으로 구입하여 재실험한 결과 각기 0.9460ppm, 2.4800ppm으로 1차 실험과의 평균 및 표준편차는, 탄산음료 제품3에 대해  $1.03 \pm 0.11\text{ppm}$ , 혼합음료 제품 7에 대해  $2.34 \pm 0.19\text{ppm}$ 으로 비슷한 결과를 보였다. 또한 혼합음료 제품 7에 대해 타공장에서 제조된 동일 상품에 대해 실험한 결과 0.0920ppm으로 비교적 낮은 불소 농도를 보였는데 이는 이 경우에 있어 사용된 원료보다는 사용된 물에서 불소가 기인한 것으로 결과를 해석하는데 타당성이 보여진다. 물에 있어 높은 불소 농도를 보이는 가능한 원인을 생각해 보면, 첫째, 불소 농도의 기복성을 고려하지 않고 정기적인 원수에 대한 수질 검사가 이루어지지 않았을 가능성과 둘째, 제품용수 처리 공정을 제대로 따르지 않았을 가능성을 생각해 볼 수 있다. 우리 나라에서는 먹는 물 수질기준의 정량한계 및 결과표시<sup>59)</sup>에서 불소 농도를 1.5ppm이하로 규정하고 있으나 실지로 당국이 수질을 검사하기보다는 정기적으로 보고를 받는 형식이였다. 1989년 M. J. Larsen<sup>60)</sup> 등은 식수내 불소 농도의 시간에 따른 기복성에 대해 유럽 및 아프리카의 광범위한 지역을 대상으로 연구를 시행하였는데, 기후 및 다른 국소적 인자로 인해 많은 변동을 보였음을 보고하였다. 이러한 변동이 무시할 정도라는 가정 하에 실지로 많은 연구들이 행해졌으며, 저자의 연구도 그러한 점은 고려하지 못했다. 좀 더 시간적, 공간적 간격을 두고 대상을 수집하지 못하였으며, 차후 광범위하고 집중적인 연구가 더 필요하리라 사료된다.

Clovis와 Hargreaves<sup>61)</sup>는 인접한 상수도수불소화지역과 불소화되지 않은 지역에서 11.9세 어린이를 대상으로 3일간의 음료수 일기를 작성하도록 하여 소비되는 음료수로부터 불소 섭취량을 조사해본 결과 비불소화지역에서 가장 음료수를 적게 섭취하는 어린이 3명 중 2명만이 불소보조제 전량 투여를 필요로 하였고, 이

지역에서 가장 음료수를 많이 섭취하는 어린이 3명 중 1명은 아예 불소보조제가 필요치 않았으며, 나머지 2명도 보조제 전량 투여를 필요로 하지 않았다. 1992년 Pang<sup>62)</sup> 등은 North Carolina주에서 치아형성기에 있어 중요한 연령인 2세-10세의 아동을 대상으로 음료수 일기를 작성하여 연령 군별 음료수(물과 우유가 제외됨) 섭취량을 조사하고 이로부터 불소 섭취량을 계산하였다. 총 일일 수분 섭취량중 물과 우유가 제외된 음료수는 약 60%를 차지하였으며 각 연령별 일일 음료수 섭취량 및 이를 통한 일일 불소섭취량은 2-3세에 571ml, 0.36mgF/day, 4-6세에 658ml, 0.54mgF/day, 7-10세에 740ml, 0.60mgF/day이었다. 우리 나라 시판 음료 평균불소농도 0.23ppm을 Pang의 결과 즉 일일 음료수 섭취량의 자료를 빌어 음료수를 통한 일일 불소 섭취량을 계산하면 2-3세에 0.13mg F/day, 4-6세에 0.15mgF/day, 7-10세에 0.17mg F/day이다. 그러나 음료수의 개인마다 음료수 기호도가 다르며, 섭취량이 상이하므로 개인별 식이 상담이 필요하리라 생각된다. 예를 들어, 상수도수비불소화지역에 거주하는 5세 어린이가 2ppm농도의 음료 한 캔(250ml)을 마셨다면 0.5mg의 불소를 이미 섭취한 결과이며, 여기에 불소보조제를 전량 즉 0.5mg을 매일 복용하는 아이라면 과량의 불소 섭취한 결과가 된다. Shulman<sup>63)</sup> 등은 평균 총 일일 수분 소비량을 바탕으로 이 모든 음료가 1ppm이라고 가정했을 때 모든 수분으로부터 섭취하는 불소량이 적정 일일 평균 불소 필요량이라고 보았으며, 이것이 1940년대 Dean의 시대라면 불소 보조제 권장량이었을 것이나, 불소 노출원이 다양해진 오늘날 상수도수비불소화역이라고 이 용량대로 불소보조제를 처방하는 것은 위험하다고 하였다.

한편, 미국 National Research Council<sup>64)</sup>은 불소를 아연, 철 그외 몇몇 무기질과 함께 영양상으로 인간에게 중요한 미량 원소로 분류하고 있다. 경미 혹은 중등도의 반점치를 발생시키기 위해서는 2ppm이상의 물을 계속적으로 섭취하여야 한다는 보고<sup>64, 65)</sup>도 있으며, 체중 1kg당 2-5mg의 불소를 먹는 경우 1회 용량

300-750mg정도로 구토 및 오심을 야기할 수 있으며, 1회 용량 5.0g의 NaF를 먹은 경우 성인에게 사망을 초래하는 양으로 알려졌다<sup>66)</sup>. 이는 1ppm으로 불소화된 물 한 컵으로 섭취하는 불소량의 10000배이다. 미국 National Academy of Science<sup>64, 67)</sup>에 의해 장기간의 저농도 불소 섭취로부터 부작용의 가능성이 연구되어 왔는데 매일 20-80mg의 불소를 수년간 섭취하여야 만성적인 독성 증후군을 보인다고 보고하였고 이를 먹는 물로 환산한다면 인도와 같이 기온이 높은 지역에서 적어도 10ppm이상의 물을 먹는 것과 동일하다고 하였다. 그러므로 적정 불소화 지역에서는 단순히 물을 마시는 데로부터의 위험은 없다고 보고하였다.

불소는 적정 농도에서는 분명 효과적인 우식예방 물질임에 틀림없다. 그러나 시대에 따라서 지역에 따라서 사람들의 식이 습관이 변화하며 이를 고려하지 않고 불소를 적용시키는 것은 비가역적인 결과를 야기할 수 있으므로 개인의 불소 노출 가능성에 대한 자료를 확보하여야 한다. 본 연구에서 저자는 시판 음료수 종류마다 불소 함량에 상당한 차이가 있음을 발견할 수 있었다. 그러므로 상수도수불소화 지역에서는 효율적인 불소 섭취를 위해서, 그리고 비불소화지역에서는 적정량의 불소보조제 처방을 위하여 개개인의 식이 상담이 선행되어야 하며, 제조업체들에게는 상품에 불소 농도가 표기되도록 권장되어야 하겠다.

## V. 결 론

저자는 국내에서 시판되는 음료수 72종을 대상으로 HMDS를 이용한 미세확산법과 불소 이온 전극으로 불소 농도를 측정하여, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 시판되는 72종의 음료수의 평균 불소 농도는  $0.23 \pm 0.10$ ppm이었고, 최소 0.0106 ppm, 최대 2.2050ppm이었다.
2. 천연과즙음료는 평균  $0.15 \pm 0.10$ ppm, 희석과즙음료 평균  $0.09 \pm 0.11$ ppm, 탄산음료는  $0.15 \pm 0.23$ ppm, 혼합음료  $0.50 \pm 0.$

66ppm의 불소농도였으며, 이중 희석과즙음료와 혼합음료, 탄산음료와 혼합음료사이에는 유의한 차이가 있었다. ( $p < 0.05$ )

3. 연령별 음료수 소비량과 이중 시판음료 소비가 차지하는 비율을 보고한 자료를 이용하여 평균 불소농도가 0.23ppm인 시판음료를 기준으로 일일 불소 섭취량을 계산하면, 2-3세에 0.131mgF/day, 4-6세에 0.151mgF/day, 7-10세에 0.170mgF/day 이므로, 부가적인 불소섭취가 필요하다.

## 참고문헌

1. Safe Drink Water Comomittee, National Research Council. Drinking Water and Health, Washington DC National Academy of Sciences, 369-400, 1977
2. Largent E. : The Supply of Fluoride to Man : Introduction. In : Fluorides and Human Health, WHO, Geneva, Switzerland, : 17-18 1987
3. American Dental Association, Fluoride Facts, Chicago, The Association : 301p 1993
4. Glass, R.L. : The First International Conference on the Declining Prevalence of Dental Caries. J Dent Res. 61 Special Issue : 1301-83 1982
5. Glass, R.L. : Secular changes in caries prevalence in two Massachusetts towns. J Dent Res. 61 Special issue : 1352-55 1982
6. Hunter, P.B.V. : The prevalence of dental caries in 5-year-old New Zealand children. N. Z. Dent. J. 75 : 154-57 1979
7. McEntery, T.M. Davies. G.N. : Brisbane dental survey. 1977. A comparative study of caries experience of children in Brisbane. Australia over 20-year period. Commun Dent Oral Epidemiol. 7 : 42-50 1979

8. Infante, P.F. : Dietary fluoride intake from supplements and communal water supplies. *Am J Dis Child.* 129 : 835-37 1975
9. Leverett. D.H. : Fluorides and changing prevalence of dental caries. *Science* 217 : 26-30 1982
10. Messer, L.B., Walton, J.L. : Fluorosis and caries experience following early post-natal fluoride supplementation : A report of 19 cases. *Pediatr Dent.* 2 : 267-74 1980
11. U.S. Public Health Service, Report of the Ad Hoc Subcommittee to Coordinate Environment Health and Related Programs. Review of Fluoride : Benefits and Risks. Washington, DC. February 1991
12. Adair, S.M., Wei, S.H.Y. : Supplemental fluoride recommendations for infants based on dietary fluoride intake. *Caries Res.* 12 : 86-82 1978
13. Adair, S.M., Wei, S.H.Y. : Fluoride content of commercially prepared strained fruit juices. *Pediatric Dent.* 1 : 174-76 1979
14. Farkas, C.S., Farkas, E.J. : Potential effect of food processing on the fluoride content of infant foods. *Sci Total Environ.* 2 : 399-405 1974
15. Ophaug, R.H., Singer, L., Harland, B.F. : Estimated fluoride intake of 6-month-old infants in four dietary regions of the United States. *Am J Clin Nutr.* 33 : 324-27 1980
16. Ophaug, R.H., Singer, L., Harland, B.F. : Estimated fluoride intake of average two-year-old children in four dietary regions in the United States. *J Dent Res.* 59 : 777-81 1980
17. Leverett, D. : Prevalence of Dental fluorosis in fluoridated and nonfluoridated communities-a preliminary investigation. *J Public Health Dent.*, 46(4) : 186-187. 1986
18. New Fluoride Guidelines proposed : ADA News : *JADA.* Vol 125. April 1994
19. Catherine M. Flaitz 등 : A Survey of Bottled Water usage by pediatric dental patients : implications for dental health. *Quintessence Int.* Vol 20 No 11. 847-852 1989
20. 이광수, 김진태, 김종철 : 불소화상수에 대한 정수기사용시 불소농도변화에 관한 연구. 대한 소아치과 학회지 20(1) : 309-317, 1993
21. 송연희 : 도시관급수 불화사업의 우식예방 효과에 대한 추구 조사연구, 석사학위논문, 서울대 학교 대학원 치의학과. 1993
22. Survey of 1974 Sales. National Soft Drink Association. Washington, DC., 1975
23. Galagan DJ. Vermilion JR. Nevitt GA. Zachary MS. Dart RE. Climate and fluid intake. *Public Health Rep.* 72 : 484-90 1957
24. Beals TL. Anderson GH. Peterson RD. Thompson GW. Hargreaves JA. Between-meal eating by Ontario children and teenagers. *J Can Diet Assoc.* 42 : 242-7 1981
25. Chao ESM. Anderson GH. Thompson GW. Hargreaves JA. Peterson RD. A longitudinal study of dietary changes of a sample of Ontario children. II : food intake. *J Can Diet Assoc.* 45 : 112-8 1984
26. McClure FJ. Ingestion of Fluoride and dental caries. *Am J Dis Child* : 66 : 362-9 1943
27. 과학기술처 : 한국식품과 식용수 중 불소의 위생학적 연구, 서울. 1971
28. 이종훈, 정동균, 김관식, 이효재, 정태영 ; 음료수 및 지표수의 수중성분 ; 대한구강생물학회지, 1(2) 7-25 ; 12월. No 1. Vol 12 1978
29. 김동기, 최유진 : 식물성식품 및 음료중 불소함량에 관한 연구 ; 대한 구강 보건학회지 ; Vol 9 No 1 25-34 1985
30. 조승환, 신승철 : 상수도수 불화시험을 위한 각 지역별 음료수의 불소농도에 대한 비교 조사연구 ; 대한 구강보건학회지 Vol 19 No

- 2, 257-278 1995
31. Taves, D.R. : Separation of fluoride by rapid diffusion using hexamethyldisiloxane. *Talanta*, 15 : 969-974 1968
  32. Taves, D.R. : Effect of silicone grease on diffusion of fluoride, *Anal. Chem.*, 40(1) : 204-206 1968
  33. Taves, D.R. : Evidence that there are two forms of fluoride in human serum. *Nature*, 217 : 1050-1051 1968
  34. Duff, E.J. : Total and ionic fluoride in milk. *Caries Res.* 15 : 406-8 1981
  35. Ophaug, R H. Singer, L. Nonionic fluoride in foods. *J Dent Res.* 62 : 232(abstr.) 1983
  36. Singer, L., Ophaug, R.H. : Fluoride content of foods and beverages. In *National Symposium on Dental Nutrition*, ed. S.H.Y. Wei. pp. 47-62. Iowa City. Iowa : Univ. Iowa Press 1979
  37. Spak, C.J., Ekstrand. J. Zylberstern. D. : Bioavailability of fluoride added to baby formula and milk. *Caries Res.* 16 : 249-56 1982
  38. Ophaug, R.H., Singer, L. : Influence of variations in fluoride intake on the ionic and bound fraction of plasma and muscle fluoride. *Proc Soc Exp Biol Med.* 155 : 23-26 1977
  39. G. Stubba Rao : Dietary intake and bioavailability of fluoride. *Ann Rev Nutr.* 4 : 115-36 1984
  40. Singer, L., Ophaug, R.H. : Total fluoride intake of infants. *Pediatrics* 63 : 460-66 1979
  41. Taves, D.R. : Is fluoride intake in the United States changing ? Continuing Evaluation of the Use of Fluoride. Boulder, Colo. : Westview 149-57 1979
  42. Taves, D.R. : Dietary intake of fluoride. Ashed (total fluoride) vs unashed (inorganic fluoride) analysis of individual foods. *Br. J. Nutr.* 49 : 295-302 1983
  43. Waterhouse, C., Taves, D., and Munzer, A. : Serum inorganic fluoride ; changes related to previous fluoride intake, renal function and bone resorption. *Clin. Sci.*, 58 : 145-152 1980
  44. Venkateswarlu P. : Fallacies in the determination of total fluoride and nonionic fluorine in the diffusates of unashed sera and ultrafiltrates. *Biochem. Med.*, 14 : 368-377 1975
  45. Whitford. GM, Reynold KE : Plasma and developing enamel fluorosis concentrating during chronic acid-base disturbance. *J. Dent. Res.* 58 : 2058-2065 1979
  46. Adair SM, Wei S.H.Y. : Supplemental fluoride recommendations for infants based on dietary fluoride intake. *Caries Res* 12 : 76-82 1978
  47. Dabeka RW, McKenzie AD, Conacher HBS, Kirkpatrick DC : Determination of fluoride of fluoride in Canadian infant foods and calculation of fluoride intakes by infants, *Can J Public Health* 73 : 188-191 1982
  48. Ericsson Y., Wei S.H.Y. : Fluoride supply and effects in infants and young children. *Pediatr Dent* 1 : 44-54 1979
  49. 김정옥, 김종철, 손동수 : 각종 분유내의 불소농도와 영아의 불소섭취에 관한 연구, *대한소아치과학회지*, 22(1) : 1-14, 1995
  50. Steven M. Adair, Stephen H.Y. Wei., : Fluoride content of commercially prepared strained fruit juice ; *Pediatr Dent.* Vol 1 No 3 173-176 1979
  51. Jan G. Stannard : Fluoride levels and fluoride contamination of fruit juice. *The Journal of Clinical Pediatric Dent.* Vol 16 No 1 38-40 1991
  52. Almedia, H. : Identification of amount of fluoride in port wine. *An. Inst. Vinho Porte*, 2 : 45 1945
  53. Anna Enno : Fluoride content of prepac-

- kaged fruit juices and carbonated soft drinks : *Med. J. Aust.* 2 : 340-342 1976
54. Ira L. Shannon : Fluoride in carbonated soft drinks. *Texas Dental J.* 6. Mar. 6-9 1977
  55. 제조업체와의 연락을 통해서(1996년 8월)
  56. Full, C.A., Parkins, F.M. : Fluoride reduction by home water softeners. *J. Dent. Res.* 51 : 666 1972
  57. Groman, K.W., Nazif, M.M., Zullo, T. : The effect of water conditioning on fluoride concentration. *A.S.D.C.J. Dent. Child.* 47 : 21-23 1980
  58. Full, C.A., Wefel, J.S. : Water softener influence on anions and cations. *Iowa Dent. J.* 69 : 37-39 1983
  59. 1995년 2월 7일 음료수 관계법 제65462-31호와 관련. 수자원공사제공
  60. M.J. Larsen. : Fluctuation of fluoride concentrations in drinking water : a collaborative study. : *International Dental Journal* 39, 140-146 1989
  61. Clovis J., Hargreaves JA. : Fluoride intake from beverage consumption. *Community Dent. Oral Epidemiol.* 16 : 11-5 1988
  62. D.T.Y. Pang, C.L. Phillips and J.W. Bawden ; Fluoride Intake from Beverage Consumption in a Sample of North Carolina children. : *J. Dent. Res.* 71(7) : 1382-1388, July, 1992
  63. Jay D. Shulman, James A, Lalumandier : The average daily dose of fluoride ; a model based on fluid consumption. *Pediatric Dent.* 17 : 1 1995
  64. Recommended Dietary Allowances. : National Research Council, Food and Nutrition Board. Tenth Edition, Washington, DC, National Academy of Sciences. 1990
  65. Driscoll WS, Horowitz HS, Meyers RJ, et al. : Prevalence of dental caries and dental fluoride in areas with optimal and above-optimal water fluoride concentrations, *JADA* 107 : 42-47 1983
  66. Hodge HC., Smith FA. Biological properties of inorganic fluorides. In : *Fluoride Chemistry.* Simons HH, ed. New York, Academic Press, 1-42 1965
  67. National Research Council. The Health Effects of Ingested Fluoride. : Report of the Subcommittee on Health Effects of Ingested Fluoride, Committee on Toxicology, Board on Environmental Studies and Toxicology, Commission on Life Sciences, National Academy Press ; Washington, D. C., August 16 1993