J. Fd Hyg. Safety
Vol. 25, No. 4, pp. 402~409 (2010)

Journal of Food Hygiene and Safety
Available online at http://www.foodhygiene.or.kr

한약재의 약용부위별 중금속 함량 및 탕 액에서의 이행률 조사

정삼주* · 강성태[1] · 한창호 · 김수진 · 고숙경 · 김윤희 · 김유경 · 김복순 · 최병현
서울시보건환경연구원, [1]서울산업대학교

Survey of Heavy Metal Contents and Intake Rates After Decoction in Herbal Medicines Classified by Parts

Sam Ju Jung*, Sung Tae Kang[1], Chang Ho Han, Su Jin Kim, Suk Kyung Ko, Yun Hee Kim, Yoo Kyung Kim, Bog Soon Kim, and Byung Hyun Choi
Seoul Metropolitan Goverment Research Institute of Public Health and Environment, Department of Food Science and Technology, [1]Seoul National University of Technology
(Received August 6, 2010/Revised October 14, 2010/Accepted November 30, 2010)

ABSTRACT - The study was conducted to estimate the contents of heavy metal in commercial herbal medicines (1047 samples of 132 species) which were collected from markets in Seoul and to analyze the contents of heavy metals of herbal medicines by classifying them by parts. The samples were digested using microwave method. The contents of heavy metal (Pb, Cd, and As) and Hg were determined using Inductively coupled plasma-Mass spectrometer (ICP/MS). And the contents of Hg were obtained by Mercury analyzer. The average values of heavy metal in herbal medicines were as follows [mean (minimum-maximum), mg/kg]; Pb 0.870 (ND-69.200), As 0.148 (ND-2.965), Cd 0.092 (ND-2.010), and Hg 0.007 (ND-0.137). And the average values of heavy metal by parts in herbal medicines were as follows [mean (minimum-maximum), mg/kg]; *Ramulus* 2.046 (0.065-4.474), *Herba* 1.886 (0.048-10.404), *Flos* 1.874 (0.052-5.393), *Cortex* 1.377 (0.011-4.837), *Radix* 1.165 (0.012-70.111), *Rhizoma* 1.116 (0.016-5.490, *Fructus* 0.838 (0.017-4.527), *Perithecium* 0.729 (0.013-4.953), *Semen* 0.646 (0.006-4.416). The average values of heavy metal of imported herbal medicines except *Radix* were higher than domestic ones. By decoction of herbal medicines exceeding the tolerances, average intake rates of Pb, As, Cd and Hg were obtained as 6.1%, 40.3%, 4.7%, and 2.2%, respectively.

Key words: herbal medicines, heavy metals, ICP-MS, decoction, intake rates.

한약재는 “한약” 또는 “한약제제”를 제조하기 위한 원료로 사용되는 생약으로서 최근 생활수준의 향상과 더불어 건강한 삶을 누리기 위한 노력이 증가하면서 질병의 치료뿐만 아니라 약해진 체력의 회복을 위해서 한약재를 통해 건강을 유지하려는 경향이 많아지고 있다[1]. 또한 전 세계적으로 한약재의 사용량이 증가되고 있으며, 단순히 탕이나 환제가 아닌 다류, 기능성 식품 및 음료 등의 원료로 사용됨으로서 한약재에 대한 소비패턴이 다양화되고 있다[2]. 반면에 한약재에 사용되는 농약의 종류, 사용량뿐만 아니라 인체에 축적되는 잔류량에 대한 의문과 토양오염에 의한 중금속 오염에도 관심이 고조되고 있으며, 특히 국가간의 다각적 교역의 증가에 따라 재배 및 가공공정들이 우리에게 잘 알려져 있지 않으므로 안전성에 대한 국민의 관심과 우려가 증가하고 있는 것이 사실이다[3]. 또한 일부에서는 자가 처방에 의한 한약재를 이용한 민간요법의 성행으로 인해 치명적인 결과를 초래할 가능성을 배제 할 수 없다[4]. 따라서 한약재를 가공한 상품의 안전성과 질의 중요성이 더욱 강조되고 있는 실정이다. 이처럼 한약재 안전관리의 문제점이 지속적으로 제기된 결과 식품의약품안전청에서는 생약 등의 중금속 허용기준이 중금속 전체량을 합산한 총량으로서 30 ppm 이었던 것을 생약 중 개별중금속 허용기준으로서 납 5, 비소 3, 카드뮴 0.3, 수은 0.2 mg/kg 이하, 생약의 추출물과 생약만을 주성분으로 하는 제제는 총중금속 30 mg/kg이하로 하여 식품의약품안전청고시 제2005-62호로 고시하고, 2006년 4월부터 시행하였으며, 고시 제 2006-17호에서는 검 액의 습식분해법을 추가하는 개정을 고시하고 있다. 한약재중 중금속허용기준은 한약재 원제에 함유되어 있는 중금속의 섭취량을 규제하고자 정하였는데 캐나다의 경우 원재료로 사용되는 생약의 기준(As:5 mg/kg, Pb:10 mg/kg, Cd:0.3 mg/kg, Hg:0.2 mg/kg)과 최종 완제품의

*Correspondence to: Sam-ju Jung, Seoul Metropolitan Government Research Insitute of Public Health and Environment
Tel : 82-2-968-5091, Fax : 82-2-968-8174
E-mail : twin2000@seoul.go.kr

기준(As:0.01 mg/kg/day, Pb:0.02 mg/kg/day, Cd:0.006 mg/kg/day, Hg:0.02mg/kg/day)을 다르게 설정하여 완제품의 경우 더 낮은 기준 값을 설정 관리하고 있다[5]. 한약의 안전성에 문제가 되는 중금속은 인간의 활동에 의해서도 환경에 배출될 수 있는 오염물질로서 화학적으로는 비중이 4이상으로 이동성이 적어 최초로 오염되는 지역에 머무르는 경향이 강하고, 토양 내에 수년에서 수십 년의 반감기를 가지면서 쉽게 분해되지 않고 축적되는 특성이 있으며 개별 유해중금속 중 납, 카드뮴, 비소는 발암물질 또는 발암가능성이 높은 물질로 분류되어 있다[6]. 한약재에 중금속이 오염되는 경로는 도시하수나 산업폐수가 수계에 유입되어 수질을 오염시킨 후 한약재로 이행되는 경우, 산업폐기물 등이 농경지로 유입되어 한약재를 오염시키는 경우, 매연이나 분진 등 대기 오염물에 함유된 중금속이 한약재로 이행되는 경우, 건조나 분쇄과정 중 기기로부터 유입되는 경우이다. 위와 같은 경로로 유입된 중금속은 자연적으로 쉽게 제거되지 않아 1차적으로 한약재에 축적되고, 생육장해를 일으켜 수확량을 감소시키며, 최종적으로 동물이나 사람이 한약재를 섭취함으로서 체내에 축적되어 건강장해를 유발시킨다[7]. 따라서 본 연구에서는 유통한약재에 대한 정보 부족 및 중금속 오염에 대한 문제점이 대두되는 상황에서 약재 부위별 특성과 관련된 중금속 오염정도를 파악하여 위해성 평가활용 목적의 모니터링을 실시하고, 한약재는 대부분 탕으로 끓이거나 환제로 만들어 섭취하므로 중금속이 과다하게 오염된 약재를 선정하여 탕 액으로 각 각 만들어 제조 전과 제조 후의 농도를 측정하여 중금속의 이행률을 산정해 봄으로써 보다 구체적인 품질관리를 위한 근거자료를 제시하고자 한다.

재료 및 방법

재 료

본 연구에 사용한 시료는 서울지역을 중심으로 유통되는 국내산 및 수입산 한약재 중 총 132품목 1047건을 대상으로 하였으며 약용부위별로 분류한 시료의 목록은 Table 1과 같다. 시료는 균일하게 약 300 g을 취해 Mixer (FM-681, Hanil, Seoul, Korea)로 분쇄한 후 50메시 체로 친 후 기밀용기에 보관하여 사용하였다.

Table 1. List of the herbal medicines used for monitoring

Part	Latin name
Radix (32)	*Achyranthis Radix, Aconiti Lateralis Radix Preparata, Adenophorae Radix, Angelicae Dahuricae Radix, Angelicae Gigantis Radix, Angelicae Tenuissimae Radix, Araliae Continentalis Radix, Astragali Radix, Aucklandiae Radix, Bupleuri Radix, Clematidis Radix, Codonopsis Pilosulae Radix, Dipsaci Radix, Glehniae Radix, Glycyrrhizae Radix et Rhizoma, Osterici Radix, Paeoniae Radix, Platycodonis Radix, Polygalae Radix, Puerariae Radix, Rehmanniae Radix Preparata, Salviae Miltiorrhizae Radix, Saposhnikoviae Radi, Scrophulariae Radix, Scutellariae Radix, Trichosanthis Radix, Sohorae Radix, Curcumae logae Radix, Sanguisorbae Radix, Rehmanniae Radix, Morindae Radix, Polygoni Multiflori Radix*
Rhizoma (22)	*Acori Gramineri Rhizoma, Alismatis Rhizoma, Anemarrhenae Rhizoma, Arisaematis Rhizoma, Atractylodis Rhizoma Alba, Atractylodis Rhizoma, Cimicifugae Rhizoma, Cnidii Rhizoma, Coptidis Rhizoma, Curcumae Longae Rhizoma, Cyperi Rhizoma, Dioscoreae Rhizoma, Fritillariae Thunbergii Bulbus, Rhei Undulatai Rhizoma, Sparganii Rhizoma, Zingiberis Rhizoma, Alpiniae Officinari Rhizoma, Drynariae Rhizoma, Imperata Rhizoma, Sinomeni Caulis et Rhizoma, Curcumae Rhizoma, Polygonati Rhizoma*
Cortex (9)	*Acanthopanacis Cortex, Cinnamomi Cortex, Eucommiae Cortex, Kalopanacis Cortex, Magnoliae Cortex, Mori Cortex, Moutan Cortex, Phellodendri Cortex, Ulmi Cortex*
Ramulus (5)	*Akebia Caulis, Cinnamomi Ramulus, Mori Ramulus, Uncariae Ramulus, Bambusae Caulis in Taeniam*
Herba (15)	*Agastachis Herba, Artemisiae Capillaris Herba, Ephedrae Herba, Leonuri Herba, Menthae Herba, Perillae Folium, Pogostemonis Herba, Taraxaci Herba, Visci Herba, Lophatheri Herba, Dendrobii Herba, Cynomorii Herba, Artemisiae Argyi Herba, Epimedii Herba, Siegesbeckiaae Herba*
Fructus (23)	*Amomi Fructus Rotundus, Amomi Fructus, Aurantii Fructus Immaturus, Chaenomelis Fructus, Corni Fructus, Crataegi Fructus, Forsythiae Fructus, Gardeniae Fructus, Hordei Fructus Germinatus, Longan Arillus, Lycii Fructus, Ponciri Fructus Immaturus, Rubi Fructus, Schisandrae Fructus, Zizyphi Fructus, Zamthoxyli Fructus, Anethi Fructus, Mume Fructus, Hoveniae semen Cum Fructus, Kochiae Fructus, Tribuli Fructus, Xanthii Fructus, Anisi Stellati Fructus*
Semen (19)	*Arecae Semen, Cassiae Semen, Castaneae Semen, Coicis Semen, Cuscutae Semen, Massa Medicata Fermentata, Nelumbinis Semen, Persicae Semen, Plantaginis Semen, Psoraleae Semen, Raphani Semen, Thujae Semen, Trichosanthis Semen, Zizyphi Semen, Tritici Levis Semen, Arctii Semen, Myristicae Semen, Alpiniacae Katsumadaii Semen, Armeniacae Semen*
Flos (5)	*Carthami Flos, Chrysanthemi Flos, Lonicerae Flos, Schizonepetae Spika, Syzygii Flos*
Perithecium (2)	*Polyporus, Poria Sclerotium*

시약

중금속 분석을 위해 ICP/MS 전처리용으로 사용한 H_2O_2, HNO_3 (Electronic grade, Dong Woo Fine Chem., Seoul, Korea)는 모두 반도체 가공용으로 EP-S급을 사용하였다. 중금속 표준용액으로 Multi-element standard for ICP/MS (10 μg/mg, Agilent, USA)와 Hg standard solution (1,000 mg/kg, Kanto Chemical Co., Japan)을 사용하였고, 회수율검정을 위해 복숭아 잎을 기본물질로 하여 조제된 미국국립표준연구원의 표준인증물질(1547 : Peach Leaves, NIST- National Institute of Standards & Technology)을 사용하였다. 실험에 사용한 물은 모두 초 순수제조장치(MQ Gradient, Millipore, Massachusetts, USA)로 제조한 18.2MΩ이상의 것을 사용하였다.

납, 비소, 카드뮴 분석

시료의 분해는 곱게 분쇄한 시료 0.5 g을 정밀하게 달아 마이크로웨이브용 Express Vessel에 넣고 70% HNO_3 12 mL를 가한 후 Hood에서 16시간이상 방치하여 예비 분해를 한 후 Microwave Digestion System (MARS 5 Version 194A01, CEM, North Carolina, USA)으로 분해하였으며, 600W(혹은 1200W : Vessel 30개 이상일 경우) Power에서 15분간 200°C까지 상승시킨 후 5분간 온도를 유지하고, 1분간 210°C까지 상승시킨 후 5분간 유지하고 다시 1분간 220°C까지 상승시킨 후 5분간 유지하여 분해하였다. 분해 후 방 냉, 탈기하고 Vessel에 H_2O_2 1 mL를 가하여 탈색시킨 후 증류수를 가하여 50 mL로 정용하고 여과 후 시험용액으로 사용하였다. 중금속을 분석하기 위해서는 Octapole Reaction System (ORS)이 부착된 Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer (Agilent 7500ce, Tokyo, Japan)를 이용하여 분석하였으며 기기분석 조건은 Table 2와 같다. 검량선은 다원소 표준원액을 5% HNO_3 용액으로 희석하여 0.5, 1.0, 2.0, 5.0, 10, 20, 50 및 100 μg/kg 농도로 조제하여 측정하였으며, 시료와 동일하게 공실험을 하여 실제 시료의 중금속 함량을 구하였다.

Table 2. Operating conditions and data acquisition parameters for ICP-MS

Parameter	Operating conditions
Rf power (W)	1,500
Argon gas flow rates	
Plasma	15.0 L / min
Auxiliary	0.27 L / min
Carrier	0.85 L / min
He gas flow rate	3.0 mL / min
Sampling and skimmer cones	Nickle
Acquisition parameters	Quantitative
Points / mass	3
Integration time / mass	0.1 sec
Mean acquisition time / replicate	7.28
Replicates	3
Mean acquisition time / sample	21.84 sec

수은 분석

분쇄한 시료 50 mg를 정밀히 달아 수은분석기(Mercury analyzer NIC, MA-2, Nippon Instrument Co., Japan)를 사용해 고온으로 가열 분해하여 수은을 기화시켜 수은 포집기에 포집, 농축하여 측정하는 가열기화금아말감법(Combusion-Gold Amalgamation Method)으로 파장 253.7 nm에서 흡광도를 측정하여 정량 분석하였다. 수은 표준원액은 0.001% L-cysteine (98%, Nacalai Tesque Inc., Tokyo, Japan) 용액으로 희석하여 0.5, 1, 2, 5, 10 및 20 μg/kg이 되도록 조제한 후 수은분석기로 분석하여 검량선을 작성하여 정량하였다. 수은 분석용 첨가제로서 HG-MHT, HG-BHT (Nippon Instruments Co., Japan)을 사용하였다.

검출한계 및 회수율 시험

무기성분들을 동시에 분석하기위한 분해효율과 측정감도를 비교하는 방법으로 표준인증물질(Certified Reference Materials :CRM's)을 이용하여 회수율을 측정하였는데 3개 이상의 시료를 분석시료와 동일하게 전 처리 한 후, 기기로 분석하여 그 평균값을 토대로 원소별 평균값을 측정값과 비교하여 회수율 및 표준편차를 구하고 상대표준편차(RSD : Relative Standard Deviation, %)를 구하였다[8]. 검출한계(LOD, Limit of detection)와 정량한계(LOQ, Limit of quantitation)는 반응의 표준편차와 검량선의 기울기에 근거하는 방법에 따라 표준용액을 단계별로 5회 반복 측정하여 평균값으로 검량 y를 작성하여 다음의 식에 따라 계산하였다.

$LOD = 3.3 \times \sigma / S$ $LOQ = 10 \times \sigma / S$

(σ:반응의 표준편차, S:검량선의 기울기)

탕 액의 조제와 중금속 측정방법

기준을 초과한 시료를 대상으로 한 탕 액 조제 시 약탕기(DWP-5000M, Dae-Woong, Korea)를 사용하였으며, 임 등[9]과 김 등[10]의 실험에서 사용한 방법에 따라 시료를 각각 50 g씩 약포지에 담고 약탕기에 넣은 후 물 800 mL를 가해 10분 간 방치한 다음 150분 동안 탕제를 실시하였다. 150분이 경과하면 바로 약탕기를 내려 식힌 후 500 mL의 메스실린더에 탕 액을 넣고 정제수로 정용하고, 그 액을 흔들어 섞은 다음 5 mL를 정확히 취한 것을 검 액으로 하여 사용하였다

결과 및 고찰

검출한계 및 회수율 측정결과

표준인증물질을 이용하여 측정한 평균 회수율은 납 90.7%,

Table 3. Certified concentration of constituent elements

Elements	Certified (mg/kg)		Measured[1] (mg/kg)		Recovery (%)	RSD (%)[3]	LOD[4] (μg/kg)	LOQ (μg/kg)	R^2
	Mean	SD	Mean[2]	SD					
Pb	0.870	0.030	0.789	0.011	90.7	1.4	0.036[1]	0.108	0.9996
As	0.060	0.018	0.062	0.001	103.3	1.6	0.011	0.034	0.9999
Cd	0.026	0.003	0.026	0.001	100.0	3.8	0.035	0.108	0.9999
Hg	0.031	0.007	0.029	0.001	93.5	3.4	0.009	0.033	0.9999

[1]Measured ICP – MS and Mercury Analyzer
[2]Mean values obtained from three measurements.
[3]RSD (%) = standard deviation/mean value × 100
[4]Limit of detection (LOD) = 3.3 × σ/S
Limit of quantitation (LOQ) = 10 × σ/*S*

Table 4. Heavy metal contents in herbal medicines by parts

Part	Item	No. of samples	Pb (mg/kg)	As (mg/kg)	Cd (mg/kg)	Hg (mg/kg)	Total (mg/kg)
Radix	32	330	0.88 ± 3.861[1] (ND-69.200)[2]	0.189 ± 0.259 (ND[3]-2.432)	0.090 ± 0.105 (ND-0.883)	0.007 ± 0.009 (ND-0.081)	1.165 ± 3.939 (0.012-70.111)
Rhizoma	22	141	0.777 ± 0.903 (ND-4.618)	0.164 ± 0.239 (ND-1.803)	0.167 ± 0.255 (ND-2.010)	0.007 ± 0.011 (ND-0.093)	1.116 ± 1.083 (0.016-5.490)
cortex	9	68	1.166 ± 1.157 (ND-4.399)	0.113 ± 0.134 (ND-0.724)	0.088 ± 0.091 (ND-0.420)	0.009 ± 0.010 (ND-0.063)	1.377 ± 1.197 (0.011-4.837)
Ramulus	5	41	1.818 ± 1.325 (0.028-4.405)	0.082 ± 0.107 (0.001-0.600)	0.136 ± 0.176 (0.003-0.810)	0.010 ± 0.008 (0.001-0.031)	2.046 ± 1.420 (0.065-4.474)
herba	15	90	1.532 ± 1.534 (ND-7.190)	0.233 ± 0.421 (0.002-2.965)	0.107 ± 0.103 (0.003-0.461)	0.013 ± 0.012 (ND-0.059)	1.886 ± 1.916 (0.048-10.404)
Fructos	23	158	0.661 ± 0.858 (ND-4.098)	0.119 ± 0.272 (ND-2.423)	0.053 ± 0.061 (ND-0.240)	0.006 ± 0.006 (ND-0.039)	0.838 ± 1.001 (0.017-4.527)
Semen	19	164	0.552 ± 0.305 (ND-4.370)	0.048 ± 0.082 (ND-0.600)	0.043 ± 0.052 (ND-0.250)	0.003 ± 0.003 (ND-0.017)	0.646 ± 0.598 (0.006-4.416)
flos	5	30	1.495 ± 1.299 (ND-4.290)	0.267 ± 0.337 (ND-1.286)	0.092 ± 0.080 (0.001-0.340)	0.021 ± 0.026 (ND-0.137)	1.874 ± 1.536 (0.052-5.393)
Perithecium	2	25	0.592 ± 1.124 (ND-4.644)	0.071 ± 0.121 (ND-0.510)	0.057 ± 0.144 (0.001-0.610)	0.009 ± 0.010 (0.001-0.037)	0.729 ± 1.296 (0.013-4.953)
Total	132	1047	0.870 ± 2.345 (ND-69.200)	0.148 ± 0.255 (ND-2.965)	0.092 ± 0.144 (ND-2.010)	0.007 ± 0.010 (ND-0.137)	1.116 ± 2.461 (0.006-70.111)

[1]Mean ± standard deviation
[2]Detection range
[3]ND : Not Detected

비소 103.3%, 카드뮴 100%, 수은 93.5%였다. 검출한계와 정량한계 결과 납, 비소, 카드뮴의 검량선은 0.5-100 μg/kg 농도에서 납의 경우 R^2 = 0.9996, 비소와 카트뮴은 R^2 = 0.9999로 나타났으며, 수은의 검량선은 0.5-20 μg/kg 농도에서 R^2 = 0.999로 양호한 직선성을 보였다. 또한 납, 비소, 카드뮴 및 수은의 검출한계는 0.036, 0.011, 0.035, 0.009 μg/kg, 정량한계는 0.108, 0.034, 0.108, 0.033 μg/kg로 이는 고시에 따른 생약의 개별중금속 기준보다 훨씬 낮은 값으로 분석결과의 타당성이 증명되었다(Table 3).

약용부위별 중금속함량 평가

약용부위별로 납, 비소, 카드뮴, 수은의 함량을 측정한 결과(Table 4), 전체시료의 중금속 평균 함량은 납 0.870 mg/kg, 비소 0.148 mg/kg, 카드뮴 0.092 mg/kg, 수은 0.007 mg/kg이고, 검출범위는 납 ND-69.200 mg/kg, 비소 ND-2.965 mg/kg, 카드뮴 ND-2.010 mg/kg, 수은ND-0.137 mg/kg로 나타났다. 약용부위별 납의 평균 함량은 줄기류(1.818) > 잎류(1.532) > 화류(1.495) > 표피류(1.166) > 뿌리류(0.880) > 뿌리줄기류(0.777) > 열매류(0.661) > 버섯류(0.592) > 종자류(0.552) 순으로 오염정도가 높은 것으로 나타났으며, 검출범위를 살펴보면 다른부위에 비해 잎류의 검출 범위가 ND-7.190 mg/kg로 넓게 나타나 중금속 중 납의 개별기준이 5 mg/kg인 것을 감안할 때 잎류의 납에 대한 오염정도가 높았다. 이는 납의 함량이 잎, 줄기, 꽃과 같은 지상부가 지하부보다 유의적인

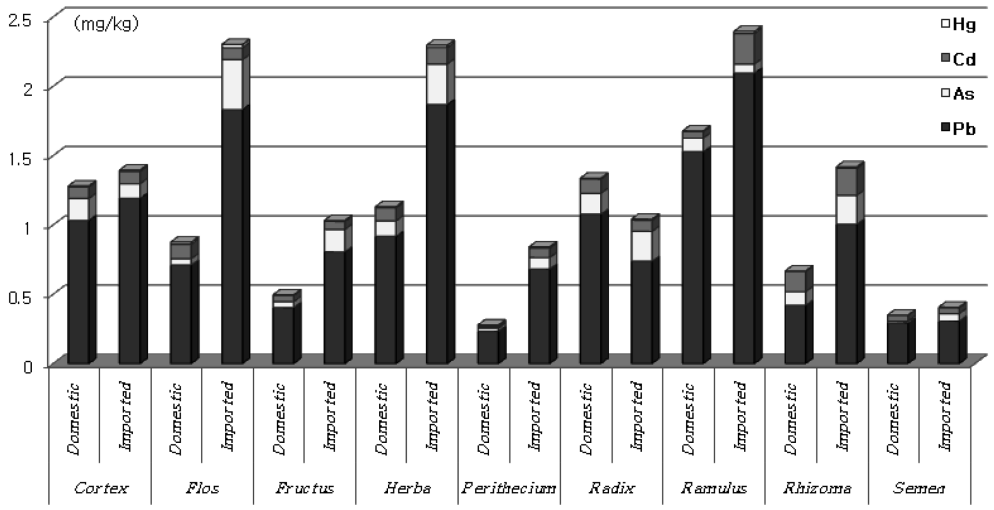

Fig. 1. Heavy metal contents of herbal medicines based on the using parts and production area. Domestic 345 samples of 56 spieces and imported 702 samples of 76 species were tested.

수준에서 높았고, 납의 기준을 초과한 시료도 지상부에서 더 많았다는 김 등[12]의 연구와 비슷한 결과를 나타내었다. 반면 뿌리류의 경우 납 평균함량이 0.880 mg/kg인데 반해서 검출범위는 ND-69.200 mg/kg으로 매우 넓게 나타났는데 이는 검사시료 중 국산 시호 1건에서 납의 함량이 69.200 mg/kg로 높게 검출되어 납의 검출범위와 평균함량에 영향을 미친 것으로 보인다. 비소의 경우 잎류와 화류가 각각 0.233, 0.267 mg/kg으로 다른 부위에 비해 평균함량이 높았고, 검출범위는 뿌리류 ND-2.432, 잎류 0.002-2.965, 열매류가 ND-2.423 mg/kg으로 다른 부위에 비해 높게 나타났다. 카드뮴의 평균 함량을 비교한 결과 다른 부위에 비해 뿌리줄기류, 줄기류, 잎류의 평균 함량이 높게 나타났다. 검출범위는 뿌리줄기류가 ND-2.01 0mg/kg으로 상당히 높았으며 뿌리류 ND-0.883, 표피류 ND-0.420, 줄기류 0.003-0.810, 잎류 0.003-0.460, 열매류 ND-0.240, 종자류 ND-0.250, 화류 ND-0.340, 버섯류 ND-0.610 mg/kg으로 시료 대부분이 카드뮴 개별기준인 0.3 mg/kg 수준을 포함하는 넓은 범위를 나타내었다. 이것은 카드뮴이 대부분의 시료에서 일정량 고르게 검출되었음을 의미하는 것으로 이는 카드뮴 함량이 대부분의 시료에서 고르게 나타났다는 김 등[11]의 연구결과와 비슷한 경향을 보였다. 수은의 경우 잎류 0.013, 화류 0.021 mg/kg를 제외하고 대부분이 전체 평균 0.007 mg/kg보다 낮거나 비슷한 수준을 보였다.

약용부위에 따른 개별중금속의 합을 살펴보면 줄기류(2.046) > 잎류(1.886) > 화류(1.874) > 표피류(1.377) > 뿌리류(1.165) > 뿌리줄기류(1.116) > 열매류(0.838) > 버섯류(0.729) > 종자류(0.646)의 순으로 오염정도를 나타내었다. 이들 결과는 약용부위별 개별중금속의 합이 종자류와 열매류는 낮으나 줄기류, 화류, 잎류에서 중금속 오염이 높게 나왔다는 김 등[12]의 연구 결과와 유사하였다. 이는 약용작물 스스로 토양으로부터 중금속을 흡착하는 능력에 따라 함량이 달라질 수 있으며, 농약의 경우 작물 표면적이 넓을수록 잔류성이 높은 것과 같이 약용작물의 표면적과 중금속 농도와도 어느 정도 상관성이 있을 것으로 보인다.

납, 비소, 카드뮴, 수은을 합한 전체 중금속 함량을 기준으로 하여 약용부위와 산지별로 농도를 비교했을 때(Fig. 1) 뿌리류를 제외한 다른 부위에서 모두 국내산보다 수입산의 함량이 높았으며, 특히 뿌리줄기류, 잎류, 화류, 버섯류, 열매류는 국내산(0.668, 1.133, 0.876, 0.278, 0.496 mg/kg)과 수입산(1.418, 2.296, 2.302, 0.842, 1.032 mg/kg)의 함량 차이가 2배 이상 나는 것으로 나타났다. 이는 한 등[13~15]의 연구에서 수입산 한약재가 국내산 한약재보다 대부분 중금속 함량이 높은 것으로 조사된 결과와 일치하였다.

개별중금속 기준에 의한 기준초과 한약재 조사

지금까지 분석한 한약재 총 132종 1047건 중 식품의약품안전청 기준을 초과한 한약재는 23품목 34건으로 비소와 수은에서 기준을 초과한 것은 없었으며, 납의 경우 국내산 한약재 1건(시호)과 수입산 한약재 4건(한련초, 희렴, 애엽,

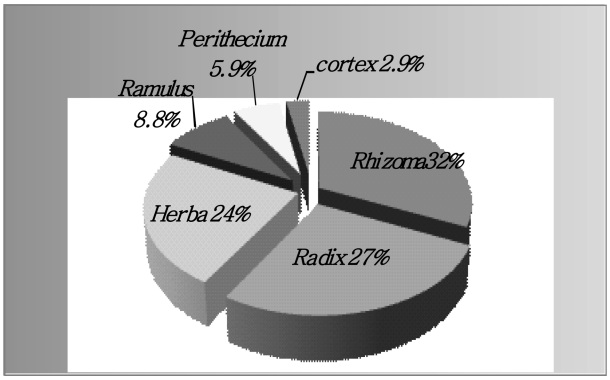

Fig 2. Distribution of herbal medicines which exceeded individual heavy metal standards. Herbal medicines were classified by the using part.

파극천)으로 나타났고, 카드뮴은 국내산 4건(포공영, 인진호, 갈근, 시호)과 창출, 속단, 계지 등 수입 27건으로 나타났다. 시호와 희렴의 경우 납과 카드뮴이 함께 기준을 초과하였다. 기준이 초과된 한약재 34건 중 국내산(12%)에 비해 수입산(88%)이 차지하는 비율이 높았으며, 부위별로 살펴보면 34품목 중 뿌리줄기류가 11건(32%)으로 가장 많았고, 뿌리류가 9건(27%), 잎류 8건(24%), 줄기류 3건(8.8%) 및 버섯류 2건(5.9%), 표피류가 1건(2.9%)으로 뿌리줄기류를 포함한 뿌리류가 거의 60%를 차지하는 것으로 나타났다(Fig. 2). 이중 파극천을 제외하고 뿌리류와 뿌리줄기류의 19건 모두가 카드뮴의 기준을 초과하는 것이었고 이 중 시호와 갈근을 제외한 나머지 시료 모두 수입인 것을 감안할 때 재배지 토양과 카드뮴과의 상관성을 짐작할 수 있었다. 또한 재배지 토양과 한약재 중의 중금속 농도가 비례관계를 보인다는 이 등[16]과 박 등[17]의 보고처럼 한약재는 자연 환경 속에서 재배, 생산되므로 환경오염의 영향을 받고 중금속에 오염될 가능성이 크므로 그 원인 분석과 함께 운반, 수송, 보관 중의 적절한 관리와 검사의 질적 향상이 요구되며, 수입하는 지역의 토양에 대한 물리 화학적 특성과 재배환경을 분석하여 카드뮴 오염에 대한 연구가 필요할 것으로 보인다.

Table 5. Intake rates of heavy metals after decoction

Part	Sample name	Intake rate(%)				
		Pb	As	Cd	Hg	Total
Herba (8)	*Taraxaci Herba*	2.8	2.2	14.6	0.0	4.0
	Ecliptae Herba	0.5	18.0	3.3	0.0	1.3
	ArtemisiaeIwayomogii Herba	43.5	70.0	4.0	0.0	17.6
	Siegesbeckia Herba	4.3	8.0	2.2	0.0	4.9
	Siegesbeckia Herba	3.2	21.7	2.7	0.0	4.2
	Agrimoniae Herba	2.2	36.4	2.3	0.0	4.1
	Artemisiae Capillaris Herba	14.2	85.3	9.3	0.0	13.7
	Artemisiae Argyi Folium	4.9	34.1	9.1	0.0	13.3
Radix (9)	*Bupleuri Radix*	0.1	13.8	1.6	0.0	0.2
	Linderae Radix	25.0	90.0	10.0	0.0	15.8
	Puerariae Radix	16.9	66.7	11.5	0.0	15.8
	Aucklandiae Radix	2.9	42.9	4.3	12.5	4.5
	Curcumae Radix	3.3	50.8	3.4	0.0	5.0
	Dipsaci Radix I	4.1	11.5	5.3	0.0	7.2
	Dipsaci Radix II	3.2	17.9	3.4	0.0	5.2
	Dipsaci Radix III	0.8	20.1	6.2	0.0	6.0
	Morindae Radix	0.6	11.6	0.0	5.9	1.1
Rhizoma (11)	*Curculiginis Rhizoma*	3.9	19.3	4.4	16.7	6.2
	Belamcandae Rhizoma	0.6	6.3	4.7	0.0	2.7
	Atractylodis Rhizoma I	1.2	28.6	2.3	0.0	2.6
	Atractylodis Rhizoma II	3.9	47.4	6.3	0.0	6.4
	Atractylodis Rhizoma III	4.8	33.2	9.5	0.0	7.5
	Curcumae Rhizoma I	0.3	31.3	1.9	0.0	1.7
	Curcumae Rhizoma II	10.3	83.3	8.0	0.0	10.2
	Drynariae Rhizoma I	3.5	27.5	3.5	0.0	4.6
	Drynariae Rhizoma II	0.0	84.4	5.2	0.0	5.1
	Coptidis Rhizoma I	7.7	46.4	11.5	0.0	10.3
	Coptidis Rhizoma II	9.7	65.9	8.2	11.1	11.4
Ramulus (3)	*Cinnamomi Ramulus I*	13.3	81.7	0.0	0.0	11.6
	Cinnamomi Ramulus II	7.2	48.2	0.0	0.0	7.3
	Cinnamomi Ramulus III	5.3	98.0	1.2	23.5	5.7
Perithecium (2)	*Polyporus I*	0.0	11.5	0.0	5.3	1.4
	Polyporus II	0.0	12.7	0.0	0.0	0.9
Cortex	*Cinnamomi Cortex*	2.3	43.7	0.0	0.0	2.9
	Total (34)	6.1	40.3	4.7	2.2	6.5

기준초과 한약재의 탕제 전, 후의 중금속 이행률 조사

중금속이 높게 검출된 한약재 총 23품목 34건에 대하여 각각 탕 액을 제조하여 중금속 이행률을 알아본 결과(Table 5) 탕 액에서의 납 이행률은 0.0%-43.5%의 범위로 나타났다. 납 평균 이행률은 6.1%였으며 한인진(43.5%)을 포함한 오약(25.0%), 인진호(14.2%), 갈근(16.9%), 아출II(10.3%), 계지I(13.3%)등이 평균값보다 높은 이행률을 보였다. 비소의 경우 탕제 전 비소의 개별기준을 초과한 시료는 없었으나 탕액에서의 이행률이 2.2%- 98%의 범위로 나와 평균 이행률이 40.3%로 상당히 높게 나타났다. 비소는 다른 원소들에 비해서 대부분 이행률이 높게 나타났는데 한인진, 인진호, 오약, 아출, 골쇄보, 계지 등은 70%이상의 높은 이행률을 보였다. 카드뮴의 경우 탕액에서의 이행률은 0.0%-14.63%의 범위를 보였으며, 평균 이행률은 4.7%로 나타났다. 탕제 전에 카드뮴 개별기준을 초과했던 대부분의 시료들이 탕제 후 농도가 허용치보다 낮은 값을 보였으며, 납과 마찬가지로 이행률이 현저히 저하하는 경향을 보였다. 수은의 경우 이행률이 0%-23.53%의 범위로 나타났으며, 평균값은 2.2%로 나타났다. 전체 평균 이행률은 0.21%-17.6% 범위로 나타났고 평균 6.5%의 이행률을 보였다. 시료 중 애엽, 인진호, 한인진, 오약, 갈근, 계지, 황련, 골쇄보는 이행률이 10% 이상으로 나와 평균보다 높은 이행률을 보였다. 임 등[9]의 연구와 비교해보면 납, 카드뮴, 수은의 평균 이행률은 10% 이내로서 거의 비슷한 결과를 보였으나 비소의 평균 이행률이 26.1%인 결과와는 다소 차이를 보였다. 그러나 다른 원소에 비해 비소의 평균 이행률이 높게 나온 것과 거의 모든 원소에서 오약, 황련 등이 평균값 보다 높은 이행률을 보인 것은 비슷한 양상을 나타내었다. 이와 같은 결과로서 비소와 수은의 경우는 전체적으로 허용한계치를 초과하는 경우가 적어 비교적 안전한 것으로 보이며 납, 카드뮴의 경우 탕제 후에는 중금속 함량이 현저히 떨어져 어느 정도 안전성이 확보되어 지는 것으로 나타났다. 그러나 비소의 이행률이 다른 원소에 비해 대부분 높게 나타나는 것에 대해서는 지속적인 모니터링의 실시와 체계적인 관리가 필요하겠으며, 향후 한약재 재배과정 중 농약의 사용으로 인해 비소의 함량에 영향을 미치는지에 대한 연구도 함께 수행되면 좋을 것으로 보인다.

한약은 천연물을 기원으로 하기 때문에 토양, 수질 등 주변의 환경에 의하여 영향을 많이 받으므로 약재의 산지와 기후, 품종, 토양과 분석 방법 간의 차이, 생약의 약용부위에 따라서도 다소 함량의 차이가 있어 다른 문헌과의 일률적인 비교는 어렵다[4]. 그리고 대부분이 한약재를 전탕하여 복용하고 있으며, 전탕하는 과정에서 약재 성분인 불용성 및 난용성의 무기염, 탄닌 등이 금속과 반응하게 되므로 최종적으로 사람이 복용하는 형태인 탕제의 금속함량은 달라질 수 있다[18]. 따라서 보다 안전하고 구체적인 품질 관리를 위해서는 한약의 조제방식에 따른 금속 농도의 변화를 고려할 필요가 있으며, 이를 위한 연구가 보강, 수행 되어야 할 것으로 사료된다.

요 약

본 연구에서는 국내에서 유통되는 한약재 132품목 1047건을 대상으로 하여 납, 비소, 카드뮴, 수은의 함량을 측정하고 오염정도를 약용부위별로 비교 분석하였다. 시료는 microwave 법을 이용하여 분해하였으며 납, 카드뮴, 비소는 유도결합 플라즈마 질량분석기 (ICP/MS)를 이용하여 분석하였고 수은은 수은 분석기를 이용하여 측정하였다. 전체시료의 중금속 평균 함량은 납 0.870 (ND-69.200) mg/kg, 비소 0.148 (ND-2.965) mg/kg, 카드뮴 0.092 (ND-2.010) mg/kg, 수은 0.007 (ND-0.137) mg/kg으로 나타났다. 또한 납, 비소, 카드뮴, 수은을 합한 전체 중금속 함량을 기준으로 한 약용부위별 중금속 합계 평균함량은 줄기류 2.046 (0.065-4.474), 잎류 1.886 (0.048-10.404), 화류1.874 (0.052-5.393), 표피류 1.377 (0.011-4.837), 뿌리류 1.165 (0.012-70.111), 뿌리줄기류 1.116 (0.016-5.490, 열매류 0.838 (0.017-4.527), 버섯류 0.729 (0.013-4.953), 종자류 0.646 (0.006-4.416)의 순으로 나타났다. 중금속 평균 함량은 뿌리류를 제외한 다른 부위에서 모두 국내산 한약재보다 수입산 한약재에서 다소 높게 나타났다. 기준을 초과한 이들 시료를 탕 액으로 만들어 탕제 전후의 중금속 함량을 측정하고 이행률을 산정한 결과 이행률 평균값은 납 6.1%, 비소 40.3%, 카드뮴 4.7%, 수은 2.2%로 나타나 탕제 후에 중금속 함량이 현저히 떨어지는 결과를 보였다. 본 연구결과는 시중 유통 중인 한약재에 대한 보다 세부적인 중금속 기준설정과 구체적인 품질관리를 위한 참고 자료로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 서울시 보건환경연구원 강북농수산물검사소의 지원으로 이루어졌으며, 김동규, 김욱희, 신 영, 김화순, 이성득 선생님께 감사드립니다.

참고문헌

1. Kim, M.K., Hur, M.H., Lee, C.H., Jin, J.S., Jin, S.K., Lee, Y.J.: Monitoring of residual sulfur dioxide in herbal medicines. *Kor. J. Pharmacogn*., **35**, 276-282 (2004).
2. Sohn, E.S., Kim, S.W., Kang, J.S., Lee, S.P.: Domestic R&D trend analysis of functional food using medical plants. *Applied Chem*., **8**, 470-473 (2004).
3. Chun, O.K.: A study on the contents of inorganic metals and the safety in botanical pills. *J. Food Hyg. Safety*., **16**, 300-307 (2001).
4. Go, B.S.: Study on security of quality control and safety in

traditional medicine herbs. Korea Institute of Oriental Medicine, Daejeon, Korea., pp. 2-148 (1998).
5. Korea Food & Drug Administration. The study of hazard materials monitoring and their intaking rate on oriental herbal medicine : Heavy metal. pesticide and sulfur dioxide. Korea Food & Drug Administration, Seoul, Korea., pp. 39-88 (2006).
6. Kim, J.S., Hwan,g S.W., Kim, J.M., Ma, J.Y.: Monitoring research for heavy metals as endocrine disruptors in herbal medicines and *Ssangwha-Tang. Korean Journal of Oriental Medicine*., **6**, 117-122 (2000).
7. Lee, S.J.: A Study on the heavy metal concentrations of herb remedy. MS thesis, Graduate School Kyungwoon University, Sungnam, Korea. (2003).
8. Kim, B.S.: Analysis of minerals by inductively coupled plasma-mass pectrometry in milled rice. PhD thesis, Graduate School Dankook University, Seoul, Korea. (2007).
9. Yim, O.K., Han, E.J., Chungm J.Y., Park, K.S., Kang, I.H., Kang, S.J., Kim, Y.J.: The monitoring of some heavy materials in oriental herbal medicines and their intake rates. *Anal. Sci. Technol*., **22**, 128-135 (2009).
10. Kim, D.G., Han, E.J., Han, C.H., Kim, O.H., Kwak, J.E., Jung, S.J., Yune, Y.T., Kim, B.S., Choi, B.H.: The migration of heavy metals from herbal medicines after boiling. Proceedings of the 39th Annual Meeting of Korean Society of Pharmacognosy. Abstract No. PC-17 (2008).
11. Kim, J.W., Choi, H.Y., Cho, J.H., Kim, D.H., Kan, I.H., Shimm, Y.H., Kim, E.K.: Studies on monitoring hazardous substances of natural medicines (I) -Studies on heavy metals of natural medicines in market-. *Kor. J. Herbology*, **17**, 235-245 (2002).
12. Kim, D.G., Kim, B.S., Han, C.H., Kim, O.H., Choi, B.H., Hwaing, I.S., Kim, M.Y., Park, S.K. : Distribution of hazardous heavy metals in commercial herbal medicines classified by plant parts used in Seoul. *Anal. Sci. Technol*, **22**, 504-513 (2009).
13. Han, E.J., Kim, D.G., Han, C.H., Kim, O.K., Kwak, J.E., Jung, S.J., Kim, B.S., Choi, B.H. : Heavy metal contents of herbal medicines in common use for food and medicine from markets in Seoul. Report of Seoul Institute of Health & Environment, Korea, **44**, 126-139 (2008).
14. Shin, Y., Kwak, J.E., Han, C.H., Hwang, Y.S., Park, A.S., Kim, D.G., Han, E.J., Jung, S.J., Kim, B.S., Choi, B.H.: Monitoring of heavy metal in herbal medicines from markets in Seoul by ICP-MS. Report of Seoul Institute of Health & Environment, Korea, **43**, 226-246 (2007).
15. Ko, S.K., Seung, H.J., Song, Y.M., Yu, I.S., Choi, S.M., Kang, H.K.: Contents of heavy metals of commercial herbal medicines in Seoul area. Report of Seoul Institute of Health & Environment, Korea, **39**, 31-43 (2003).
16. Lee, S.D., Kim, M.D., Park, K.S.: Contamination level and pathway of herbal drugs. *J. Prev Med Public Health*, **2**, 209-230 (1998).
17. Park, M.K., Lee, H.J., Kim, K.J., Moon, Y.S.: The correlation of heavy metal contents in herbal medicines and their soils at north Gyeongbuk area. *J. Environ. Sci*, **14**, 185-192 (2005).
18. Park, H.M., Choi, K.H., Jung, J.Y., Lee, S.D.: Metal exposure through consumption of herbal medicine, and health risk among Korean population. *Korean J. Env. Hlth*, **32**, 186-191 (2006).