J. Fd Hyg. Safety
Vol. 26, No. 4, pp. 435~447 (2011)

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

2010년 서울지역 유통 한약재의 잔류이산화황 함량 모니터링

정삼주* · 이성득 · 김수진 · 조성애 · 김남훈 · 정희정 · 김화순 · 한기영
서울시보건환경연구원

Monitoring of Sulfur Dioxide Residue in Commercial Medicinal Herbs in Seoul (2010)

Sam ju Jung*, Sung deuk Lee, Su Jin Kim, Sung Ae Jo, Nam hoon Kim, Hee jung Jung, Hwa soon Kim, and Ki young Han
Seoul Metropolitan Government Research Institute of Public Health and Environment
(Received November 7, 2011/Revised November 28, 2011/Accepted December 7, 2011)

ABSTRACT - This study was investigated to determine the contents of sulfur dioxide residues in medicinal herbs in Seoul Yang Nyoung Shi in 2010 (1,522 samples of 189 kinds). Samples were measured by modified Monier-Williams method. Of the total samples, 618 samples (84 kinds) were domestic, and 904 samples (158 kinds) were imported. The content of sulfur dioxide in the domestics showed the range of 0.0 to 1,298.0 mg/kg (average 12.7 mg/kg), while those in imported samples were the range of 0.0 to 3,982.2 mg/kg (average 42.4 mg/kg). The average (mg/kg) amount of sulfur dioxide by parts in medicinal herbs was as follows; *Tuber* 122.3, *Radix* 69.3, *Rhizoma* 37.4, *Cortex* 33.3, *Fructus* 8.8, *Ramulus* 4.9, *Semen* 4.6, *Folium* 3.4, *Flos* 2.7, *Perithecium* 1.4. Of the total samples (1,522), 52 samples (3.4%) were violated the KFDA regulatory guidance of sulfur dioxide. Among these 52 unsuitable samples, 16 samples (7 kinds) were domestic, and 36 samples (23 kinds) were imported. Approximately 88.1% of the total samples was less than 10 mg/kg of sulfur dioxide and 6.3% of the total samples showed more than 30 mg/kg of sulfur dioxide.

Key words: sulfur dioxide, commercial medicinal herbs, modified Monier-Williams(M.W) method

서 론

한방의약에 사용되는 약재는 크게 식물류, 동물류 및 광물류의 세 종류로 분류되며, 그 중 식물류가 과반 수 이상을 차지하고 있다. 이 중 가장 광범위하게 응용되고 있는 것이 바로 식물성약재이며 뿌리, 뿌리줄기, 껍질, 잎, 꽃, 씨와 전초 등이 이용된다. 이러한 약재는 한약으로 사용하기 위하여 간단한 가공 혹은 조제과정을 거치게 되는데 옛날에는 자연에서 채취하여 사용하였으나 점차 수요가 증가하면서 인공적인 재배와 장기간의 보관에 관심을 두게 되었다. 그러나 한약과 식품의 구별이 명확하지 못하고 각 나라간의 교류가 활발해지면서 한약재의 불명확한 수확, 수집, 가공, 운반 등의 과정에서 발생하는 오염에 대한 안전성의 우려와 유해물질의 사용 여부가 최근 상당한 문제로 대두되고 있는 실정이다[1,2].

한약재의 장기간 보존과 외관 품질 향상 및 빠른 건조를 위해 유황 훈증, 연탄건조 등의 방법이 사용되고 있는데, 이때 발생하는 아황산가스는 무색으로 자극성 있는 냄새를 가지고 있으며, 식품 및 한약재의 변질과 부패방지, 갈변방지, 미생물의 억제 및 조절, 항산화, 표백효과 등이 있다[3]. 일반적으로 아황산염류는 환원력이 매우 강한 아황산을 만들어 이것이 황산으로 산화될 때 착색물을 환원시켜 강한 표백작용을 하고, ascorbate oxidase의 활성을 억제하여 항산화작용을 나타내며 또한 효소적 갈색반응을 촉진하는 polyphenoloxidase의 저해제로 작용하여 갈변현상을 억제하는 것으로 알려져 있다[4]. 그러나 그 함량이 과량인 경우 한약재의 품질 저하와 약효성분의 파괴로 약의 효능을 상실할 우려가 있으며[5], 생체 내에서 빠르게 산화되어 황산염이 되고 아황산을 유리하여 위장장애를 유발하거나 천식, 기관지염, 복부 불쾌감, 두통 등의 부작용을 일으키는 것으로 알려져 있다[6,7,8].

이에 따라 FAO/WHO Codex 전문위원회에서는 아황산염류의 1일 섭취허용량(ADI: Acceptable Daily Intake)을

*Correspondence to: Sam-ju Jung, Seoul Metropolitan Government Research Institute of Public Health and Environment, 5, Yangnyeongjungang-ro, Dongdaemun-gu, Seoul 130-864, Korea
Tel: 82-2-968-5091, Fax: 82-2-964-8174
E-mail: twin2000@seoul.go.kr

이산화황(SO_2)으로서 0.7 mg/kg(body weight)이하로 규정하고 있으며, 미국도 10 mg/kg 이상 함유한 식품은 잔류량을 표시하도록 의무화하고 있다[7,9]. 세계 각국에서는 보존료의 식품에 대한 사용량 관리를 위하여 식품첨가물 사용기준 및 규격을 설정하고 있으며, 우리나라 식품첨가물 공전에는 아황산염류(무수아황산, 메타중아황산나트륨, 메타중아황산칼륨, 아황산나트륨, 산성아황산나트륨, 차아황산나트륨 등)가 보존제 또는 항산화제, 환원표백제로 지정 고시되었고, 아황산염류는 이산화황(SO_2)으로서 그 잔류량을 규제하고 있다[10]. 이와 관련해 국내에서는 한약재의 이산화황 자연함유량과[6,11,12] 이산화황의 사용실태에 대한 연구들이 꾸준히 이루어져 왔으며[2,13-16], 그 결과 식품의약품안전청에서는 2005년 8월 1일 한약재 205품목에 대하여 생약종류별로 30, 200, 500, 1,000 및 1,500 ppm 이하의 5단계로 잔류이산화황 개별기준을 설정하는 “생약의 잔류이산화황 검사기준 및 시험방법”을 제정 고시하여 시행하였다[17]. 그러나 서로 다른 기준으로 인해 생기는 불량 한약재의 유통이 문제가 되어 2009년 1월 8일부터 보다 강화된 “생약의 잔류이산화황 검사기준 및 시험방법 개정”에 의하여 한약재 265품목에 대한 기준을 식품과 같은 30 mg/kg 이하로 통일하여 시행하게 되었고[18], 2009년 6월 16일부터는 “생약 등의 잔류, 오염물질 기준 및 시험방법”에서 생약 등의 중금속, 잔류농약, 잔류이산화황 및 곰팡이독소 기준 및 시험방법 등을 정하여 생약 등의 품질관리를 수행하고 있다[19,20]. 일부 연구에서 이산화황이 함유된 한약재를 달인 후 그 탕제를 대상으로 이산화황 잔류량을 조사한 결과 한약재 자체에서 검출된 양에 비해 달인 후에는 잔류량이 크게 감소하는 경향을 보였으나, 이산화황이 다량 검출된 한약재의 경우 이를 달인 탕 액에서도 그 잔류량이 높게 나타나 유통한약재의 잔류 이산화황에 대한 모니터링의 필요성을 야기시켰다[3,14,25]. 특히 한약재는 품목별, 사용부위별, 유통지역별로 잔류이산화황의 검출량에 대한 편차가 크므로 체계적인 모니터링이 꼭 필요하다[13].

따라서 본 연구에서는 한층 더 강화된 검사관리 기준에 따라 2010년 1월부터 12월까지 한약재 소비물량의 대부분을 공급하고 있는 서울 경동약령시와 각 자치구 소재에서 유통 중인 한약재에 대한 이산화황 잔류량을 측정하였고, 그 결과를 토대로 보다 안전한 한약재의 유통과 품질 좋은 한약재 관리를 위한 기초자료를 제공하고자 한다.

재료 및 방법

재료

실험에 사용한 시료는 2010년 1월부터 12월까지 경동약령시에서 구입한 것과 각 자치구에서 의뢰된 서울지역을 중심으로 유통되는 한약재로 총 189품목 1,522건을 대상으로 하였다. 본 연구에서는 식품의약품안전청에서 발행한 한약재진위감별도감과 한약재감별주해[21]에서의 한약재의 약용부위에 따라 시료를 분류하였으며(Table 1), 각 시료는 포장단위로 잘 섞고 균일하게 Mixer(FM-681, Hanil, Seoul, Korea)로 분쇄한 후 기밀용기에 보관하여 사용하였다.

시약

분석에 사용된 Absolute ethanol (Junsei Chemical Co., Ltd, Kyoto, Japan), Hydrochloric acid (Dongwoo Fine-Chem, Iksan, Korea), Hydrogen peroxide (Junsei Chemical Co., Ltd, Kyoto, Japan)는 특급제품을 희석하여 사용하였다. 적정에는 Methyl red (Duksan, Ansan, Korea), 0.01N-Sodium hydroxide (f = 1.0, 20°C)는 용량분석용 제조시약(Wako Pure Chemical, Osaca, Japan)을 사용하였으며, 모든 시험에 사용한 물은 초 순수제조장치(MQ Gradient, Millipore, Massachusetts, USA)로 제조한 탈이온수를 사용하였다.

기기 및 실험방법

아황산염류 분석방법인 Monier-Williams 변법은 식품 중의 아황산, 차아황산 및 그 염류 등을 산성상태에서 증류하여 과산화수소 용액으로 포집하고, 생성된 황산을 알칼리로 적정하여 정량분석하는 방법으로, 식품의약품안전청에서 고시한 이산화황 추출장치를 사용하여 다음과 같이 실험하였다. 시료 50 g과 4 N 염산 90 mL, 5% 에탄올 용액 100 mL를 플라스크에 넣은 후 냉각기에 물을 공급하고 질소가스를 가스주입관을 통하여 0.21 L/min 속도로 통과시킨다. 1시간 45분 동안 가열하여 3% 과산화수소 용액 30 mL를 넣은 수기에 포집한 후, 이 용액을 0.01 N 수산화나트륨 용액으로 20초간 지속하는 황색이 될 때까지 적정하여 아래 식에 의하여 이산화황의 양을 계산하였다.

$$\text{이산화황(mg/kg)} = \frac{320 \times V \times f}{S}$$

V: 0.01N 수산화나트륨의 소비량(mL)

f: 0.01N 수산화나트륨의 역가

S: 검체의 채취량(g) (0.01N 수산화나트륨액 1 mL = 320 μg SO_2)

회수율

Monier-Williams변법의 경우 검출한계가 10 mg/kg인 점을 감안하여 표준품 아황산수소나트륨($NaHSO_3$, Wako Pure Chemical, Osaca, Japan)으로 50 ppm, 100 ppm, 200 ppm이 되도록 표준용액을 조제하여 시료 50 g에 첨가한 후 실험하였다. 표준용액을 첨가한 시료는 이산화황이 검출되지 않은 시료를 사용하였고, 표준용액을 첨가하지 않았을 때의 실험값을 공시험 값으로 하여 보정하였다. 그 결과(Table 2) 50 ppm을 첨가했을 때 87.0%, 100 ppm을 첨가했을 때 92.6%, 200 ppm을 첨가했을 때 96.4%로서 저농도일 때 보다 고

Table 1. List of the herbal medicines used for monitoring

Radix(39)		*Rhizoma*(26)		*Fructus*(26)		*Folium*(22)	
Puerariae Radix	갈근	*Curcumae Longae Rhizoma*	강황	*Terminaliae Fructus*	가자	*Visci Herba*	곡기생
Glycyrrhizae Radix	감초	*Zingiberis Rhizoma*	건강	*Lycii Fructus*	구기자	*Agastachis Herba*	곽향
Osterici Radix	강활	*Alpiniae Officinari Rhizoma*	고량강	*Rosae Laevigatae Fructus*	금앵자	*Pogostemonis Herba*	광곽향
Angelicae Tenuissimae Radix	고본	*Drynariae Rhizoma*	골쇄보	*Zizyphi Fructus*	대추	*Chrysanthemi Zawadskii Herba*	구절초
Sophorae Radix	고삼	*Cibotii Rhizoma*	구척	*Hordei Fructus*	맥아	*Cirsii Herba*	대계
Caraganae Radix	골담초근	*Rhei Radix et Rhizoma*	대황	*Chaenomelis Fructus*	목과	*Ephedrae Herba*	마황
Trichosanthis Radix	괄루근	*Imperata Rhizoma*	모근	*Amomi Fructus Rotundus*	백두구	*Menthae Herba*	박하
Platycodi Radix	길경	*Sinomeni Caulis et Rhizoma*	방기	*Rubi Fructus*	복분자	*Eriobotryae Folium*	비파엽
Salviae Miltiorrhizae Radix	단삼	*Atractylodis Rhizoma Alba*	백출	*Cnidii Fructus*	사상자	*Mori Folium*	상엽
Angelicae Gigantis Radix	당귀	*Dioscoreae Rhizoma*	산약	*Amomi*	사인	*Cynomorii Herba*	쇄양
Codonopsis Pilosulae Radix	당삼	*Sparganii Rhizoma*	삼릉	*Crataegi Fructus*	산사	*Artemisiae Argyi Herba*	애엽
Araliae Continentalis Radix	독활	*Acori Gramineri Rhizoma*	석창포	*Corni Fructus*	산수유	*Houttuyniae Herba*	어성초
Aucklandiae Radix	목향	*Asiasari Radix et Rhizoma*	세신	*Zanthoxyli Fructus*	산초	*Epimedii Herba*	음양곽
Saposhnikoviae Radix	방풍	*Cimicifugae Rhizoma*	승마	*Anethi fructus*	시라자	*Leonuri Herba*	익모초
Angelicae Dahuricae Radix	백지	*Curcumae Rhizoma*	아출	*Forsythiae Fructus*	연교	*Lonicerae Folium et Caulis*	인동
Aconiti Lateralis Radix Preparata	부자	*Fritillariae Tunbergii Bulbus*	절패모	*Mume fructus*	오매	*Artemisiae Capillaris Herba*	인진호
Adenophorae Radix	사삼	*Rhei Undulatai Rhizoma*	종대황	*Schisandrae Fructus*	오미자	*Perillae Herba*	자소엽
Phytolaccae Radix	상륙	*Anemarrhenae Rhizoma*	지모	*Evodiae Fructus*	오수유	*Thujae Orientalis Folium*	측백엽
Dipsaci Radix	속단	*Atractylodis Rhizoma*	창출	*Longan Arillus*	용안육	*Lycopi Herba*	택란
Rehmanniae Radix Preparata	숙지황	*Cnidii Rhizoma*	천궁	*Cistanchis Herba*	육종용	*Polygoni acicularis Herba*	편축
Bupleuri Radix	시호	*Arisaematis Rhizoma*	천남성	*Alpiniae Oxyphyllae Fructus*	익지	*Taraxaci Herba*	포공영
Peucedani Radix	식방풍	*Gastrodiae Rhizoma*	천마	*Auranti Fructus Immaturus*	지각	*Artemisiae Iwayomogii Herba*	한인진
Linderae Radix	오약	*Alismatis Rhizoma*	택사	*Kochiae Fructus*	지부자		
Achyranthis Radix	우슬	*Cyperi Rhizoma*	향부자	*Ponciri Fructus*	지실		
Curcumae longae Radix	울금	*Coptidis Rhizoma*	황련	*Tribuli Fructus*	질려자		
Polygalae Radix	원지	*Polygonati Rhizoma*	황정	*Xanthii Fructus*	창이자		

Table 1. (Continued) List of the herbal medicines used for monitoring

Radix		*Semen(36)*		*Semen*		*Perithecium*(2)	
Clematidis Radix	위령선	*Sinapis Semen*	개자	*Meliae Fructus*	천련자	*Hoelen*	복령
Lithospermi Radix	자근	*Castaneae semen*	건율	*Amomi Tsao-ko Fructus*	초과	*Hoelen Cum Radix*	복신
Paeoniae Radix	작약	*Euryales Semen*	검인	*Gardeniae Fructus*	치자	*Flos*(10)	
Angelicae Decursivae Radix	전호	*Pharbitidis Semen*	견우자	*Anisi Stellati Fructus*	회향	*Puerariae Flos*	갈화
Sanguisorbae Radix	지유	*Cassiae Semen*	결명자	*Ramulus*(8)		*Chrysanthemi flos*	감국
Rehmanniae Radix	지황	*Trichosanthis Semen*	괄루인	*Cinnamomi Ramulus*	계지	*Lonicerae Flos*	금은화
Gentianae Macrophyllae Radix	진교	*Allii Tuberosi Semen*	구자	*Spatholobi Caulis*	계혈등	*Inulae Flos*	선복화
Polygoni Multiflori Radix	하수오	*Raphani Semen*	나복자	*Akebiae Caulis*	목통	*Magnoliae Flos*	신이
Glehniae Radix cum Rhizoma	해방풍	*Persicae Semen*	도인	*Loranthi Ramulrs*	상기생	*Syzygii Flos*	정향
Scrophulariae Radix	현삼	*Benincasae Semen*	동과자	*Mori Ramulus*	상지	*Prunellae Spika*	하고초
Polygoni Cuspidati Radix	호장근	*Viricis Fructus*	만형자	*Sappan Lignum*	소목	*Ecliptae Herba*	한련초
Scutellariae Radix	황금	*Thujae Semen*	백자인	*Uncariae Ramulus et Uncus*	조구등	*Schizonepetae Spica*	형개
Astragali Radix	황기	*Dolichoris Semen*	백편두	*Bambusae Caulis In Taeniam*	죽여	*Carthami Flos*	홍화
Cortex(15)		*Psoraleae Semen*	보골지	*Tuber*(5)			
Arecae Pericarpium	대복피	*Arecae Semen*	빈랑자	*Liriopis Tuber*	맥문동		
Eucommiae Cortex	두충	*Zizyphi Semen*	산조인	*Pinelliae Tuber*	반하		
Moutan Cortex	목단피	*Massa Medicata Fermentata*	신곡	*Asparagi Tuber*	천문동		
Dictamni Cortex	백선피	*Ligustri Fructus*	여정실	*Aconiti Ciliare Tuber*	초오		
Mori Cortex	상백피	*Nelumbinis Semen*	연자육	*Coryaslis Tuber*	현호색		
Acanthopanacis Cortex	오가피	*Arctii Semen*	우방자				
Ulmi Cortex	유백피	*Pruni NaKaii Semen*	욱리인				
Cinnamomi Cortex	육계	*Myristicae Semen*	육두구				
Lycii Cortex	지골피	*Coicis Semen*	의이인				
Citri Unshius Pericarpium	진피	*Perillae Semen*	자소자				
Citrii Unshius Pericarpium Immaturus	청피	*Drabae Semen*	정력자				
Alibizziae Cortex	합환피	*Plantaginis Semen*	차전자				
Kalopanacis Cortex	해동피	*Alpiniacae Katsumadaii Semen*	초두구				
Phellodendri Cortex	황백	*Cuscutae Semen*	토사자				
Magnoliae Cortex	후박	*Illici Veri Fructus*	팔각회향				
		Armeniacae Semen	행인				
		Trigonellae Semen	호로파				
		Carthami Tinctorii Seed	홍화자				

Table 2. Recovery of sulfur dioxide

Added SO_2 (mg/kg)	Found SO_2 (mg/kg)	Recovery (%)
50	43.5 ± 5.4[1)]	87.0 ± 12.3
100	92.6 ± 6.3	92.6 ± 6.8
200	192.8 ± 4.5	96.4 ± 2.3

[1)]Data are expressed as mean ± S.D.(n = 5).

농도일 때의 회수율이 더 좋았다.

결과 및 고찰

원산지 및 품목별 이산화황 잔류량

'생약의 잔류이산화황 검사 기준 및 시험방법' 제정 고시[18)]에 의해 기준 설정된 한약재 265품목 중 검사의뢰 된 한약재는 189품목 1,522건으로 국내산은 84품목 618건, 수입산은 158품목 904건 이었으며 원산지 및 품목별 잔류이산화황 검사결과는 Table 3과 같다.

전체 시료 1,552건에 대한 평균 잔류이산화황 함량은 30.3 mg/kg, 검출범위는 0~3,982 mg/kg으로 황금(1,328.8 mg/kg), 천마(534.6 mg/kg), 천문동(518.1 mg/kg), 목단피(486.9 mg/kg), 단삼(474.7 mg/kg), 우슬(468.6 mg/kg), 산약(384.8 mg/kg), 시호(321.1 mg/kg), 오약(258.0 mg/kg), 절패모(196.3 mg/kg), 현호색(188.3 mg/kg), 길경(174.3 mg/kg), 골쇄보(158.7 mg/kg), 괄루근(150.9 mg/kg), 사삼(148.1 mg/kg), 울금(149.2 mg/kg), 독활(129.8 mg/kg)의 순으로 100 mg/kg이상의 평균 잔류량을 보였다. 국내산 한약재의 평균 함량은 12.7 mg/kg, 검출범위는 0~1,298.0 mg/kg이며, 평균 30 mg/kg이상으로 검출된 한약재는 산약, 길경, 사삼, 독활 등 7품목 이었으며 내복자, 목통을 제외한 나머지 시료 75품목에서는 평균 잔류량이 10 mg/kg이하였다.

Table 3. Determination of Sulfur dioxide residual contents in herbal medicines by modifide M.W. method

Medicinal Herb	Domestic			Imported			Total		
	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)
Terminaliae Fructus	-	-	-	1	2.8	2.8	1	2.8	2.8
Puerariae Radix	9	34.3	0-298.8	4	126.0	0-494.6	13	62.5	0-494.6
Puerariae Flos	-	-	-	4	1.9	0-3.8	4	1.9	0-3.8
Chrysanthemi flos	2	2.4	2.2-2.5	3	0.5	0-1.6	5	1.3	0-2.5
Glycyrrhizae Radix	-	-	-	26	1.8	0-4.5	26	1.8	0-4.5
Osterici Radix	26	2.1	0-5.5	-	-	-	26	2.1	0-5.5
Curcumae Longae Rhizoma	-	-	-	4	5.7	0-19.6	4	5.7	0-19.6
Sinapis Semen	-	-	-	10	15.1	4.8-21.3	10	15.1	4.8-21.3
Zingiberis Rhizoma	7	2.8	0.8-5.6	1	391.2	391.2	8	51.4	0.8-391.2
Castaneae semen	16	1.3	0-2.8	-	-	-	16	1.3	0-2.8
Euryales Semen	-	-	-	2	1.2	0-2.3	2	1.2	0-2.3
Pharbitidis Semen	-	-	-	4	2.7	2.7-2.8	4	2.7	2.7-2.8
Cassiae Semen	6	1.4	0-3.0	2	1.0	0-2	8	1.3	0-3
Cinnamomi Ramulus	-	-	-	22	2.0	0-13.4	22	2.0	0-13.4
Spatholobi Caulis	-	-	-	3	9.5	0-26.4	3	9.5	0-26.4
Alpiniae Officinari Rhizoma	-	-	-	3	0.9	0-2.3	3	0.9	0-2.3
Angelicae Tenuissimae Radix	14	2.1	0-4.7	-	-	-	14	2.1	0-4.7
Sophorae Radix	-	-	-	7	1.3	0-2	7	1.3	0-2
Visci Herba	-	-	-	2	2.2	2.1-2.4	2	2.2	2.1-2.4
Caraganae Radix	-	-	-	1	1.3	1.3	1	1.3	1.3
Drynariae Rhizoma	-	-	-	2	158.7	63.5-253.8	2	158.7	63.5-253.8
Agastachis Herba	9	3.5	0-16.4	1	2.8	2.8	10	3.5	0-16.4
Trichosanthis Radix	10	61.5	0-606.3	1	1044.5	1044.5	11	150.9	0-1044.5
Trichosanthis Semen	-	-	-	2	5.4	1.2-9.6	2	5.4	1.2-9.6
Pogostemonis Herba	-	-	-	7	7.5	0.8-29.1	7	7.5	0.8-29.1
Lycii Fructus	6	4.5	2.4-8.8	2	9.1	4.5-13.7	8	5.7	2.4-13.7
Allii Tuberosi Semen	-	-	-	4	6.5	2.8-10.3	4	6.5	2.8-10.3
Chrysanthemi Zawadskii Herba	2	2.4	2.4-2.4	-	-	-	2	2.4	2.4-2.4
Cibotii Rhizoma	-	-	-	5	3.4	0-6.5	5	3.4	0-6.5
Rosae Laevigatae Fructus	-	-	-	1	1.8	1.8	1	1.8	1.8
Lonicerae Flos	-	-	-	3	4.2	3-5.6	3	4.2	3-5.6

Table 3. (Continued) Determination of Sulfur dioxide residual contents in herbal medicines by modifide M.W. method

Medicinal Herb	Domestic			Imported			Total		
	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)
Platycodi Radix	8	259.7	1.8-1298.0	4	3.5	1.9-8	12	174.3	1.8-1298.0
Raphani Semen	2	27.2	26.3-28.1	15	20.8	2.6-28.9	17	21.6	2.6-28.9
Salviae Miltiorrhizae Radix	-	-	-	6	474.7	0-1450.5	6	474.7	0-1450.5
Angelicae Gigantis Radix	39	1.8	0-11.9	-	-	-	39	1.8	0-11.9
Codonopsis Pilosulae Radix	-	-	-	3	9.3	2.3-21	3	9.3	2.3-21
Cirsii Herba	2	1.4	1-1.8	-	-	-	2	1.4	1-1.8
Arecae Pericarpium	-	-	-	4	3.2	1.6-7.6	4	3.2	1.6-7.6
Zizyphi Fructus	8	2.8	0-7	-	-	-	8	2.8	0-7
Rhei Radix et Rhizoma	-	-	-	3	0.8	0-1.2	3	0.8	0-1.2
Persicae Semen	-	-	-	13	0.7	0-2.2	13	0.7	0-2.2
Araliae Continentalis Radix	4	129.8	27.7-301.2	-	-	-	4	129.8	27.7-301.2
Benincasae Semen	-	-	-	1	1.9	1.9	1	1.9	1.9
Eucommiae Cortex	15	2.8	0.6-7.8	2	5.4	1.1-9.8	17	3.1	0.6-9.8
Ephedrae Herba	-	-	-	13	2.1	0-5	13	2.1	0-5
Viricis Fructus	-	-	-	9	2.5	0-7.7	9	2.5	0-7.7
Liriopis Tuber	13	5.6	0-11.3	-	-	-	13	5.6	0-11.3
Hordei Fructus	13	1.6	0-3.7	-	-	-	13	1.6	0-3.7
Imperata Rhizoma	-	-	-	5	36.2	1.4-128.4	5	36.2	1.4-128.4
Chaenomelis Fructus	28	1.8	0-4.6	-	-	-	28	1.8	0-4.6
Moutan Cortex	1	2.3	2.3	8	547.5	0-1475.8	9	486.9	0-1475.8
Akebiae Caulis	23	11.2	0-73	-	-	-	23	11.2	0-73
Aucklandiae Radix	-	-	-	20	3.5	0-14.3	20	3.5	0-14.3
Menthae Herba	15	3.0	0-8.2	1	0.8	0.8	16	2.8	0-8.2
Pinelliae Tuber	-	-	-	5	77.6	0-269.3	5	77.6	0-269.3
Sinomeni Caulis et Rhizoma	-	-	-	4	2.5	0-4.8	4	2.5	0-4.8
Saposhnikoviae Radix	8	2.7	1.1-4.6	-	-	-	8	2.7	1.1-4.6
Amomi Fructus Rotundus	-	-	-	3	1.1	0.8-1.3	3	1.1	0.8-1.3
Dictamni Cortex	-	-	-	2	14.1	0-28.2	2	14.1	0-28.2
Thujae Semen	-	-	-	1	3.0	3.0	1	3.0	3.0
Angelicae Dahuricae Radix	20	2.5	0-5.2	2	165.3	3.4-327.2	22	17.3	0-327.2
Atractylodis Rhizoma Alba	1	1.9	1.9	8	3.0	0-4.8	9	2.9	0-4.8
Dolichoris Semen	-	-	-	1	0.8	0.8-0.8	1	0.8	0.8
Psoraleae Semen	-	-	-	11	2.3	0-7.1	11	2.3	0-7.1
Hoelen	3	1.8	1.2-2.6	27	1.1	0-7.1	30	1.2	0-7.1
Rubi Fructus	-	-	-	8	2.0	0-4.8	8	2.0	0-4.8
Hoelen Cum Radix	1	0	0	1	9.7	9.7	2	4.8	0-9.7
Aconiti Lateralis Radix Preparata	-	-	-	7	23.9	1.3-139.7	7	23.9	1.3-139.7
Eriobotryae Folium	-	-	-	1	5.8	5.8	1	5.8	5.8
Arecae Semen	-	-	-	8	8.6	0-64.5	8	8.6	0-64.5
Adenophorae Radix	2	148.1	6.2-290	-	-	-	2	148.1	6.2-290
Cnidii Fructus	-	-	-	2	6.2	2.6-9.9	2	6.2	2.6-9.9
Amomi	-	-	-	3	2.0	0-3.6	3	2.0	0-3.6
Crataegi Fructus	3	1.9	0.8-3.7	20	1.8	0-4.3	23	1.8	0-4.3
Corni Fructus	23	1.7	0-5	-	-	-	23	1.7	0-5
Dioscoreae Rhizoma	5	420.4	83.5-841.8	1	207.0	207.0	6	384.8	83.5-841.8
Zizyphi Semen	-	-	-	7	3.7	0-12.3	7	3.7	0-12.3
Zanthoxyli Fructus	-	-	-	1	1.6	1.6	1	1.6	1.6
Sparganii Rhizoma	-	-	-	10	36.7	0-180.1	10	36.7	0-180.1
Loranthi Ramulrs	1	3.7	3.7	-	-	-	1	3.7	1.6

Table 3. (Continued) Determination of Sulfur dioxide residual contents in herbal medicines by modifide M.W. method

Medicinal Herb	Domestic			Imported			Total		
	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)
Phytolaccae Radix	1	0.7	0.7	-	-	-	1	0.7	0.7
Mori Cortex	3	1.1	0-2.0	14	81.7	1.8-514.8	17	67.5	0-514.8
Mori Folium	5	3.1	0-4.7	-	-	-	5	3.1	0-4.7
Mori Ramulus	15	2.9	0-5.0	-	-	-	15	2.9	0-5
Acori Gramineri Rhizoma	-	-	-	17	8.0	2.4-32.9	17	8.0	2.4-32.9
Inulae Flos	-	-	-	1	8.9	8.9	1	8.9	8.9
Asiasari Radix et Rhizoma	2	2.2	1.8-2.7	2	3.2	1.8-4.5	4	2.7	1.8-4.5
Sappan Lignum	-	-	-	14	1.6	0-5.3	14	1.6	0-5.3
Dipsaci Radix	-	-	-	5	17.7	1-69.5	5	17.7	1-69.5
Cynomorii Herba	-	-	-	3	7.3	0-17.4	3	7.3	0-17.4
Rehmanniae Radix Preparata	1	0.7	0.7	9	5.4	1.2-15.7	10	4.9	0.7-15.7
Cimicifugae Rhizoma	-	-	-	2	1.4	0-2.7	2	1.4	0-2.7
Anethi fructus	-	-	-	5	1.1	0-1.6	5	1.1	0-1.6
Bupleuri Radix	1	2.4	2.4	3	427.4	4.7-724.8	4	321.1	2.4-724.8
Peucedani Radix	3	2.7	1.5-3.9	-	-	-	3	2.7	1.5-3.9
Massa Medicata Fermentata	1	0.0	0.0	10	1.0	0-2.7	11	0.9	0-2.7
Magnoliae Flos	-	-	-	14	2.1	0-4.6	14	2.1	0-4.6
Curcumae Rhizoma	-	-	-	5	49.1	0-240.2	5	49.1	0-240.2
Artemisiae Argyi Herba	6	2.3	0-3.9	1	2.8	2.8	7	2.4	0-3.9
Houttuyniae Herba	3	2.2	0-6.5	-	-	-	3	2.2	0-6.5
Ligustri Fructus	-	-	-	3	2.5	1.3-4.1	3	2.5	1.3-4.1
Forsythiae Fructus	1	3.5	3.5	8	2.3	0-4.1	9	2.5	0-4.1
Nelumbinis Semen	-	-	-	14	1.1	0-4.1	14	1.1	0-4.1
Acanthopanacis Cortex	4	3.6	2-7.2	13	1.9	0-3.3	17	2.3	0-7.2
Mume fructus	-	-	-	2	5.4	5.1-5.7	2	5.4	5.1-5.7
Schisandrae Fructus	3	1.3	0-2.0	2	13.1	0-26.1	5	6.0	0-26.1
Evodiae Fructus	-	-	-	6	2.2	0-5.8	6	2.2	0-5.8
Linderae Radix	-	-	-	5	258.0	137.9-448.1	5	258.0	137.9-448.1
Longan Arillus	-	-	-	11	6.0	0-23.3	11	6.0	0-23.3
Arctii Semen	-	-	-	4	1.3	0-4.6	4	1.3	0-4.6
Achyranthis Radix	3	4.8	3.1-7.3	13	575.6	3.3-1505.7	16	468.6	3.1-1505.7
Pruni NaKaii Semen	-	-	-	3	0.9	0-2.7	3	0.9	0-2.7
Curcumae longae Radix	1	2.2	2.2	3	198.2	0-589.3	4	149.2	0-589.3
Polygalae Radix	-	-	-	8	3.6	0.9-7.9	8	3.6	0.9-7.9
Clematidis Radix	-	-	-	8	2.3	1.1-3.6	8	2.3	1.1-3.6
Ulmi Cortex	9	2.0	0-4.3	1	0.4	0.4	10	1.9	0-4.3
Cinnamomi Cortex	-	-	-	6	1.1	0-2.0	6	1.1	0-2.0
Myristicae Semen	-	-	-	3	0.0	0.0	3	0.0	0.0
Cistanchis Herba	-	-	-	1	7.2	7.2	1	7.2	7.2
Epimedii Herba	-	-	-	4	2.6	1.5-3.9	4	2.6	1.5-3.9
Coicis Semen	26	1.3	0-5.1	4	0.9	0-2.1	30	1.2	0-5.1
Leonuri Herba	10	3.7	2.5-5.5	1	0.8	0.8	11	3.5	0.8-5.5
Alpiniae Oxyphyllae Fructus	-	-	-	8	39.6	1.4-249.4	8	39.6	1.4-249.4
Lonicerae Folium et Caulis	7	3.1	0-5.9	2	4.7	4.6-4.9	9	3.4	0-5.9
Artemisiae Capillaris Herba	9	4.7	0-15	1	5.7	5.7	10	4.8	0-15
Lithospermi Radix	-	-	-	1	2.4	2.4	1	2.4	2.4
Perillae Herba	1	2.2	2.2	8	1.6	0-2.5	9	1.7	0-2.5
Perillae Semen	-	-	-	6	2.6	1.6-3.8	6	2.6	1.6-3.8
Paeoniae Radix	10	30.8	1.2-105.2	1	7.4	7.4	11	28.6	1.2-105.2
Angelicae Decursivae Radix	4	2.9	2-4	1	3.7	3.7	5	3.0	2-4
Fritillariae Tunbergii Bulbus	1	1.5	1.5	3	247.9	0-742.3	4	186.3	0-742.3

Table 3. (Continued) Determination of Sulfur dioxide residual contents in herbal medicines by modifide M.W. method

Medicinal Herb	Domestic			Imported			Total		
	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)
Drabae Semen	-	-	-	1	23.6	23.6	1	23.6	23.6
Syzygii Flos	-	-	-	7	1.3	0.7-2.5	7	1.3	0.7-2.5
Uncariae Ramulus et Uncus	-	-	-	4	1.9	0-3.3	4	1.9	0-3.3
Rhei Undulatai Rhizoma	-	-	-	8	12.9	0-92.6	8	12.9	0-92.6
Bambusae Caulis In Taeniam	3	2.1	1.6-2.7	-	-	-	3	2.1	1.6-2.7
Auranti Fructus Immaturus	-	-	-	13	89.4	0-266.4	13	89.4	0-266.4
Lycii Cortex	-	-	-	2	4.3	4-4.6	2	4.3	4-4.6
Anemarrhenae Rhizoma	-	-	-	6	11.5	2.8-28.3	6	11.5	2.8-28.3
Kochiae Fructus	-	-	-	4	2.0	0.8-3.1	4	2.0	0.8-3.1
Ponciri Fructus	-	-	-	2	3.1	3.1-3.1	2	3.1	3.1-3.1
Sanguisorbae Radix	-	-	-	5	5.3	1-16.3	5	5.3	1-16.3
Rehmanniae Radix	-	-	-	5	21.2	1.6-76.2	5	21.2	1.6-76.2
Gentianae Macrophyllae Radix	-	-	-	1	4.1	4.1	1	4.1	4.1
Citri Unshius Pericarpium	37	1.9	0-6.6	-	-	-	37	1.9	0-6.6
Tribuli Fructus	-	-	-	5	4.0	2.4-6.1	5	4.0	2.4-6.1
Plantaginis Semen	-	-	-	19	1.7	0-3.8	19	1.7	0-3.8
Xanthii Fructus	1	2.7	2.7	6	2.4	0-4.4	7	2.5	0-4.4
Atractylodis Rhizoma	1	5.1	5.1	7	2.3	0.6-4	8	2.7	0.6-5.1
Cnidii Rhizoma	11	2.9	0.8-14	-	-	-	11	2.9	0.8-14
Arisaematis Rhizoma	-	-	-	2	4.3	4.2-4.5	2	4.3	4.2-4.5
Meliae Fructus	-	-	-	2	2.7	1.3-4	2	2.7	1.3-4
Gastrodiae Rhizoma	-	-	-	2	534.6	221.8-847.3	2	534.6	221.8-847.3
Asparagi Tuber	-	-	-	3	518.1	5.7-861	3	518.1	5.7-861
Citrii Unshius Pericarpium Immaturus	1	1.3	1.3	14	2.6	0-14.1	15	2.5	0-14.1
Amomi Tsao-ko Fructus	-	-	-	3	1.7	0-4	3	1.7	0-4
Alpiniacae Katsumadaii Semen	-	-	-	3	28.9	6.8-55.7	3	28.9	6.8-55.7
Aconiti Ciliare Tuber	-	-	-	2	2.8	2.8-2.8	2	2.8	2.8-2.8
Thujae Orientalis Folium	2	2.0	0.7-3.3	-	-	-	2	2.0	0.7-3.3
Gardeniae Fructus	5	2.4	1.3-3.4	12	3.0	0.7-5.8	17	2.8	0.7-5.8
Lycopi Herba	1	5.7	5.7	-	-	-	1	5.7	5.7
Alismatis Rhizoma	5	1.2	0-2.8	-	-	-	5	1.2	0-2.8
Cuscutae Semen	-	-	-	13	8.7	0.7-75.4	13	8.7	0.7-75.4
Illici Veri Fructus	-	-	-	1	2.0	2.0	1	2.0	2.0
Polygoni acicularis Herba	1	2.2	2.2	-	-	-	1	2.2	2.2
Taraxaci Herba	4	5.4	3.1-8.7	-	-	-	4	5.4	3.1-8.7
Prunellae Spika	-	-	-	2	4.5	3-6	2	4.5	3-6
Polygoni Multiflori Radix	1	3.0	3.0	3	6.7	0-17.0	4	5.4	0-17.0
Ecliptae Herba	2	5.2	1.9-8.5	1	5.9	5.9	3	5.4	1.9-8.5
Artemisiae Iwayomogii Herba	1	6.8	6.8	-	-	-	1	6.8	6.8
Alibizziae Cortex	1	1.1	1.1	-	-	-	1	1.1	1.1
Kalopanacis Cortex	2	2.6	2.6-2.7	14	19.2	0-183.2	16	17.1	0-183.2
Glehniae Radix cum Rhizoma	-	-	-	9	5.5	1.1-26.9	9	5.5	1.1-26.9
Armeniacae Semen	-	-	-	13	0.5	0-2.1	13	0.5	0-2.1
Cyperi Rhizoma	32	1.6	0-5.8	1	1.5	1.5	33	1.6	0-5.8
Scrophulariae Radix	2	1.3	0.9-1.6	8	13.9	2.9-39.3	10	11.4	0.9-39.3
Coryaslis Tuber	-	-	-	12	188.3	2.9-451.9	12	188.3	2.9-451.9
Schizonepetae Spica	5	3.8	2.2-5	3	1.6	0-2.5	8	3.0	0-5
Trigonellae Semen	-	-	-	1	1.0	1.0	1	1.0	1.0

Table 3. (Continued) Determination of Sulfur dioxide residual contents in herbal medicines by modifide M.W. method

Medicinal Herb	Domestic			Imported			Total		
	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	Mean (mg/kg)	Range (mg/kg)
Polygoni Cuspidati Radix	-	-	-	1	6.1	6.1	1	6.1	6.1
Carthami Flos	-	-	-	3	3.6	2.2-5.6	3	3.6	2.2-5.6
Carthami Tinctorii Seed	6	2.4	1.3-4.5	2	1.9	1.1-2.8	8	2.3	1.1-4.5
Scutellariae Radix	1	1.4	1.4	2	1992.4	2.7-3982.2	3	1328.8	1.4-3982.2
Astragali Radix	13	2.0	0-8.5	4	53.8	1.3-187.1	17	14.2	0-187.1
Coptidis Rhizoma	-	-	-	1	5.3	5.3	1	5.3	5.3
Phellodendri Cortex	-	-	-	19	8.1	0.9-59.2	19	8.1	0.9-59.2
Polygonati Rhizoma	2	4.2	3-5.5	6	60.3	2.3-147.4	8	46.3	2.3-147.4
Anisi Stellati Fructus	-	-	-	6	2.0	0-5.3	6	2.0	0-5.3
Magnoliae Cortex	1	0.8	0.8	15	1.9	0-6.2	16	1.9	0-6.2
Total	618	12.7	0-1298.0	904	42.4	0-3982.2	1522	30.3	0-3982.2

n* : number of herbal medicines detected sulfur dioxide.

수입산 한약재의 경우 평균 함량 42.4 mg/kg, 검출범위는 0~3,982.2 mg/kg로 상당히 넓은 범위를 나타내었다. 수입산의 경우 158품목 중 26품목이 평균 30 mg/kg이상으로 국내산에 비해 여러 품목에서 오염정도가 높게 나타났으며 특히 황금, 괄루근의 경우 1,000 mg/kg이상, 우슬, 목단피, 천마등은 500 mg/kg이상의 높은 잔류량을 보였다. 반면에 구기자의 경우 2007년 김 등[2]의 연구에서 30 mg/kg 초과한 검체수가 14건이고 이중 1,500 mg/kg이상의 높은 함량으로 검출된 검체수가 6건이었으며, 2008년 한 등[23]의 연구에서는 구기자 8건의 평균 잔류량이 408.1 mg/kg인 것과는 다르게 본 연구에서 구기자 8건의 평균 잔류량은 5.7 mg/kg, 검출범위는 2.8~10.3 mg/kg으로 나타나 잔류량이 상당한 폭으로 감소한 것을 알 수 있었다.

잔류이산화황 농도별 검출 결과(Table 4) 1,522건의 한약재 중 1,330건(88.1%)이 10 mg/kg 이하였고, 그 중 219건(14.4%)은 전혀 검출되지 않았으며 192건(11.9%)만이 인위적 함유량으로 추정되는 10 mg/kg을 초과하였다. 검출량이 10 mg/kg 이하인 한약재가 국내산의 경우 618건 중 582건(94.2%), 수입산의 경우 904건중 758건(83.9%)이었으며, 30 mg/kg을 초과한 한약재가 국내산은 15건(2.7%), 수입산은 80건(8.8%)으로 나타났다. 강 등[6]과 이 등[11]은 한약재의 이산화황 자연함유량을 10 mg/kg 이하로 보고하고 있으며 식품공전에서는 '아황산, 차아황산 및 그 염류' 시험법에서 이산화황으로서 10 mg/kg 미만은 불검출로 보고 있어, 본 실험결과 1,522건 중 1,330건(88.1%)은 이산화황을 전혀 사용하고 있지 않은 것으로 판단되었다.

한약재의 사용부위별 이산화황 잔류량

사용부위별로 본 잔류이산화황 검출결과 *Tuber, Radix, Rhizoma, Cortex* 순으로 평균 잔류량(mg/kg)이 각각 122.3, 69.3, 37.4, 33.3으로 높게 나타났다(Table 5). 또한 국내산과 수입산을 비교해 볼 때 *Cortex, Radix, Tuber*의 평균 잔류량(mg/kg)이 국내산의 경우 각각 2.1, 24.2, 5.6인 것에 반해 수입산의 경우 53.5, 116.1, 191.3으로 상당한 차이를 보였다. 이처럼 길경, 갈근 등의 품목을 포함하는 *Radix*와 천문동, 반하와 같은 품목을 포함하는 *Tuber*가 높은 평균 잔류량을 보인 반면 *Flos, Perithecium, Folium* 등은 평균 10 mg/kg 이하로 잔류이산화황 함유량이 적은 것으로 나타났다.

Table 4. Analysis of contents amount of sulfur dioxide residue in medicinal herb

Amount (mg/kg)	Domestic		Imported		Total	
	No. of sample	distribution (%)	No. of sample	distribution (%)	No. of sample	distribution (%)
No Detection	82	13.3	137	15.2	219	14.4
10 and less than	500	80.9	621	68.7	1121	73.7
30 and less than	19	3.1	66	7.3	85	5.6
200 and less than	8	1.3	36	4.0	44	2.9
500 and less than	4	0.6	22	2.4	26	1.7
1000 and less than	4	0.6	11	1.2	15	0.9
2000 and less than	1	0.2	10	1.1	11	0.7
more than 2000	0	0.0	1	0.1	1	0.1
Total	618	100.0	904	100.0	1522	100.0

Table 5. Comparison of sulfur dioxide residues by part used

Part used	Domestic		Imported		Total	
	n*	mean	n	mean	n	mean
Cortex	74	2.1	114	53.5	188	33.3
Flos	9	3.8	41	2.4	50	2.7
Fructus	91	2.0	137	13.4	228	8.8
Herba	78	3.4	45	3.5	123	3.4
Perithecium	4	1.3	28	1.4	32	1.4
Radix	183	24.2	176	116.1	359	69.3
Ramulus	42	7.4	43	2.4	85	4.9
Rhizoma	67	33.3	108	39.9	175	37.4
Semen	57	2.3	190	5.3	247	4.6
Tuber	13	5.6	22	191.3	35	122.3
Total	618	12.7	904	42.4	1522	30.3

n* : number of herbal medicines detected sulfur dioxide.

이는 2005년 박 등[24]과 2008년 한 등[23]의 연구에서 *Tuber, Radix*에서는 평균 잔류량이 100 mg/kg이상으로 나왔으며, *Flos, Folium* 등에서는 대부분 낮은 함량을 보인 결과와 같았다. 이는 건조나 표백의 목적으로 같은 양의 아황산염류를 사용하였더라도 사용부위나 생약 고유의 형태학적 특징에 의해 잔존하고 있는 이산화황의 양에 차이가 있는 것이며[26], 생산지역이나 사용부위에 따라 건조하는데 소요되는 시간이 다르므로 유황훈증에 노출된 시간의 차이에 따라 개별적으로 차이가 생길 수 있어 지역 간 종류별로 잔류이산화황의 양에 차이가 나는 것으로 보인다. 오 등[15]의 연구에서는 천연유래 이산화황 함유량을 분석한 결과 갈근, 감초, 건강, 구기자 작약 5품목 모두 10 mg/kg 이하로 분석오차이내 수준으로 검출되었으나 연탄건조 후 수분함량이 높았던 건강(1,138 mg/kg)과 구기자(855 mg/kg)에서 높은 잔류량을 보여 한약재에 함유된 수분의 양과 연탄건조 후 이산화황 잔류량은 어느 정도 상관관계가 있으며, 이는 연탄에서 발생하는 이산화황의 물에 대한 용해도가 높기 때문에 많은 양의 아황산이 생성되는 것으로 추정하였다. 따라서 재배된 생약의 사용부위나 생약 고유의 형태학적 특징에 따른 건조 및 보관방법 등에 관한 보다 과학적인 표준화 작업이 이루어져야 하며, 이에 관한 연구도 추진될 필요가 있을 것으로 사료된다.

원산지 및 품목별 잔류이산화황 허용기준 초과 현황

본 실험에서 전체시료 1,522건 중 52건(3.4%)이 잔류이산화황 허용기준을 초과하였는데 원산지별 결과는 Table 6과 같다. 국내산 한약재의 경우 618건중 16건(2.6%)이 허용기준을 초과하였고 국내에서 유통되는 수입산 한약재 중 허용기준을 초과한 한약재는 모두 중국산으로 766건 중 36건(4.7%)이 기준을 초과하였으며, 그 외에 베트남, 인도네시아 등지에서 수입된 한약재가 유통되고 있으나 기준을 초과한 품목은 없었다. 또한 기준초과 품목 52건 중 사용부위별로 차지하는 비율은 Radix 40%, Rhizoma 27%, Tuber 13%, Fructus 8%의 순으로 나타났다(Fig. 1).

사용부위별, 품목별로 잔류이산화황 허용기준을 초과한

Table 6. Result of detection of sulfur dioxide residue according to the nation

Nation	Not to passed		Passed		Total	
	n*	%	n	%	n	%
South Africa			12	0.8	12	0.8
Madagascar			4	0.3	4	0.3
USA			10	0.7	10	0.7
Myanmar			11	0.7	11	0.7
Vietnam			40	2.6	40	2.6
North Korea			11	0.7	11	0.7
India			2	0.1	2	0.1
Indonesia			37	2.4	37	2.4
China	36	4.7	730	48	766	50.3
Thai			10	0.7	10	0.7
Pakistan			1	0.1	1	0.1
South Korea	16	2.6	602	39.6	618	40.6
Total	52	3.4	1470	96.6	1522	100

n* : number of herbal medicines detected sulfur dioxid

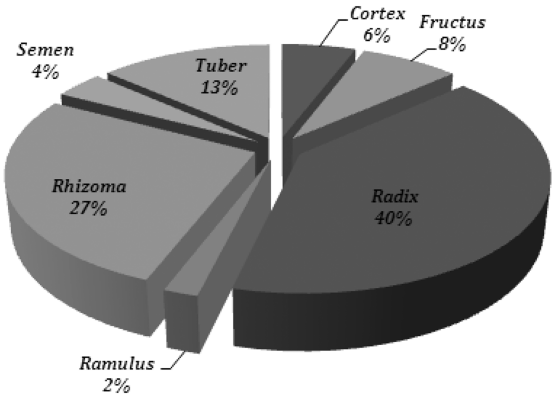

Fig. 1. Distribution of Medicinal herbs which exceeded the KFDA regulatory guidance of sulfur dioxide. Medicinal herbs were classified by parts.

한약재는 Table 7의 결과와 같이 국내산은 평균 잔류량 349.0 mg/kg(검출범위 66.9~1,298.0 mg/kg), 수입산은 평균 잔류량 446.8 mg/kg(검출범위 53.3~3,982.2 mg/kg)이었다. 국내산의 경우 7품목 16건 모두 30 mg/kg이하의 기준이 적용되어 부적합으로 판정된 것으로 특히 산약의 경우 의뢰된 국내산 산약 5건 모두 기준을 초과하였으며 독활과 사삼, 작약 등도 검사건수 대비 부적합 율이 높은 것으로 나타났다. 산약은 기존의 기준 1,000 mg/kg이하에서 강화된 기준 30 mg/kg 이하로 했을 때 기준을 초과한 것으로, 평균 잔류량이 420.4 mg/kg, 검출범위는 83.5~841.8 mg/kg이었다. 또한 길경의 경우 2건의 결과 값이 각각 762.2 mg/kg, 1,298.0 mg/kg으로 기준이 강화되기 전의 기준도 30 mg/kg 이하였음에도 불구하고 매우 높게 검출되어 기준보다 최대 약 40배 높은 결과를 보였다.

수입산의 경우 23품목 36건 중 건강(1건), 골쇄보(2건), 천마(2건)는 의뢰되어 검사한 것 모두 기준을 초과한 것으로 나타났고, 반하1건과 시호1건은 기존의 200 mg/kg이하의 기준 적용으로 각각 269.3, 552.7 mg/kg으로 검출되었다. 천마 1건과 황금은 기존기준 500 mg/kg이하의 기준적용으로 각각 847.3, 3,982.2 mg/kg의 결과를 보였으며, 그 외 다른 품목들은 모두 30 mg/kg이하의 기준적용으로 나온 결과였다. 특히 우슬의 경우 평균 잔류량이 902.1 mg/kg, 검출범위가 163.7~1,505.7 mg/kg으로 기존기준 1,500 mg/kg이하에서 강화된 기준의 적용으로 인해 30 mg/kg이하 보다 최대 50배 이상 높은 결과를 보였다. 강화된 '생약의 잔류이산화황 기준'의 적용시점이 2009년 1월 8일이고 보통 한약재의 유통기한이 3년인 것을 고려했을 때 본 실험에 사용한 시료 중 2007년~2008년에 제조된 한약재는 강화된 기준을 적용받지 않는 것을 감안하면 국내산보다 수입산 한약재에서 더 많은 품목들이 기준을 초과할 것으로 예상된다.

Table 7. Result of herbal medicines which exceeded the KFDA regulatory guidance of sulfur dioxide

part used	Medicinal Herb	Domestic			Imported		
		n*	mean (mg/kg)	Range (mg/kg)	n	mean (mg/kg)	Range (mg/kg)
Cortex (3)	*Mori Cortex*				2	168.9	89.8~248.0
	Kalopanacis Cortex				1	183.2	183.2
Fructus (4)	*Alpiniae Oxyphyllae Fructus*				2	151.4	53.3~249.4
	Auranti Fructus Immaturus				2	233.4	200.4~266.4
Radix (21)	*Puerariae Radix*	1	298.8	298.8	1	494.6	494.6
	Platycodi Radix	2	1030.1	762.2~1298.0			
	Araliae Continentalis Radix	3	163.8	95.1~301.2			
	Angelicae Dahuricae Radix				1	327.2	327.2
	Aconiti Lateralis Radix Preparata				1	139.7	139.7
	Adenophorae Radix	1	290.0	290			
	Bupleuri Radix				2	638.8	552.7~724.8
	Linderae Radix				1	137.9	137.9
	Achyranthis Radix				3	902.1	163.7~1505.7
	Paeoniae Radix	3	89.3	66.9~105.2			
	Rehmanniae Radix				1	76.2	76.2
	Scutellariae Radix				1	3982.2	3982.2
Ramulus (1)	*Akebiae Caulis*	1	73.0	73.0			
Rhizoma (14)	*Zingiberis Rhizoma*				1	391.2	391.2
	Drynariae Rhizoma				2	158.7	63.5~253.8
	Dioscoreae Rhizoma	5	420.4	83.5~841.8			
	Sparganii Rhizoma				1	75.6	75.6
	Curcumae Rhizoma				1	240.2	240.2
	Gastrodiae Rhizoma				2	534.6	221.8~847.3
	Polygonati Rhizoma				2	132.1	116.8~147.4
semen (2)	*Arecae Semen*				1	64.5	64.5
	Cuscutae Semen				1	75.4	75.4
Tuber (7)	*Pinelliae Tuber*				2	169.3	69.3~269.3
	Asparagi Tuber				2	774.4	687.7~861.0
	Coryaslis Tuber				3	422.1	374.5~451.9
Total		16	349.0	66.9~1298.0	36	446.8	53.3~3982.2

n* : number of herbal medicines detected sulfur dioxide.

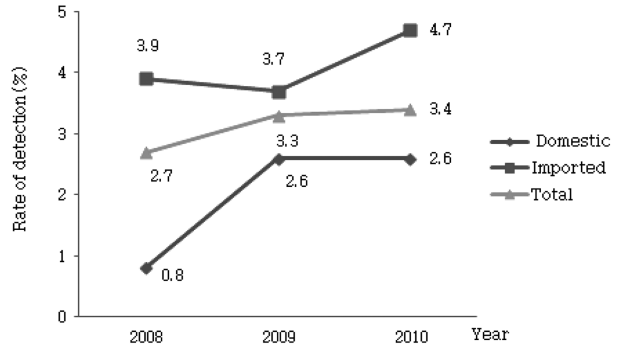

Fig. 2. Rate of detection of sulfur dioxide in medicinal herbs from 2008 to 2010.

본 실험 결과를 포함해 최근 3년간 서울시보건환경연구원에서 이루어진 한약재에 대한 잔류이산화황 모니터링결과[22,23]를 비교해 보면(Fig. 2) 잔류이산화황 허용기준초과 비율(%)이 2008, 2009, 2010년에 각각 2.7, 3.3, 3.4로 차츰 증가되었는데 국내산 한약재의 초과비율은 0.8, 2.6, 2.6%로 2009년부터 상당히 높아졌으며, 수입산은 3.9, 3.7, 4.7%로 높아졌다. 이는 어떤 품목을 대상으로 모니터링이 이루어졌는지에 따라 다소 차이가 있겠으나 2009년부터 보다 강화된 기준적용으로 인한 검사결과로 판단된다. 그러나 국내산의 경우 산약, 작약, 독활 등과 수입산의 경우 우슬, 건강, 갈근, 시호 등이 매년 부적다발 품목으로 지목되고 있다. 따라서 앞으로 강화된 기준의 정착으로 안전한 한약재가 유통될 수 있도록 산약, 시호, 건강과 같이 자주 사용되는 한약재 이면서 부적합 율이 높은 품목에 대해서는 수입 통관 시 보다 특별한 관리가 요구된다. 또한 기준이 설정되어있는 265품목 중 구맥, 노근, 호황련, 식방풍과 같이 2009년 새로 신설된 기준적용 품목들에 대해서도 보다 폭넓은 검사가 이루어져야 하겠다.

요 약

본 연구는 시중 유통 한약재 총 189품목 1,522건(국내산 84품목 618건, 수입산 158품목 904건)을 대상으로 모니어-윌리엄스변법에 따라 잔류이산화황을 측정하였으며, 전체 한약재의 잔류이산화황 평균은 30.3 mg/kg, 국내산의 평균 잔류량은 12.7 mg/kg(검출범위 0.0-1,298.0 mg/kg), 수입산의 평균 잔류량은 42.4 mg/kg(검출범위 0.0-3,982.2 mg/kg)으로 수입산이 국내산보다 약 4배가량 높게 나타났다. 한약재 중 1,330건(88.1%)이 10 mg/kg 이하 함유량을 나타냈고, 그 중 219건(14.4%)은 전혀 검출되지 않았으며 192건(11.9%)만이 인위적 함유량으로 추정되는 10 mg/kg을 초과하였다.

사용부위별 잔류량을 살펴보면 *Tuber, Radix, Rhizoma, Cortex*에서 평균 잔류량이 각각 122.3, 69.3, 37.4, 33.3 mg/kg순으로 나타났고 *Cortex, Radix, Tuber*의 평균 잔류량이 국내산의 경우 각각 2.1, 24.2, 5.6 mg/kg인 것에 반해 수입산의 경우 53.5, 116.1, 191.3 mg/kg으로 나타나 상당한 차이를 보였다.

전체 한약재 중 52건(3.4%)이 허용기준을 초과하였는데, 수입산 한약재에서 기준을 초과한 한약재는 모두 중국산으로 766건 중 36건(4.7%), 국내산은 총 618건 중 16건(2.6%)이 허용기준을 초과하였다. 국내산의 경우 7품목 16건 모두 30 mg/kg이하의 기준이 적용되어 부적합으로 판정된 것으로 갈근(298.8 mg/kg), 길경(1030.1 mg/kg), 독활(163.8 mg/kg), 사삼(290.0 mg/kg), 작약(89.3 mg/kg), 목통(73.0 mg/kg), 산약(420.4 mg/kg)이 기준을 초과하였고, 특히 산약의 경우 의뢰된 국내산 산약 5건 모두 기준을 초과하였다. 수입산은 23품목 36건이 기준을 초과하였는데 이 중 반하1건과 시호1건은 기존의 200 mg/kg이하의 기준 적용으로 각각 269.3, 552.7 mg/kg으로 검출되었고, 천마 1건과 황금은 기존기준인 500 mg/kg이하의 기준적용으로 각각 847.3, 3982.2 mg/kg의 결과를 보였으며, 그 외 다른 품목들은 모두 30 mg/kg이하의 기준 적용으로 나온 결과였다.

참고문헌

1. Jung, J.Y.: 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).
2. Kim, B.S., Park, A.S., Han, C.H., Kim, D.G., Shin, Y., Kwak, J.E., H an, E.J., Jung, S.J., Hwang, Y.S., Kim, E.J., Jung, S.S., Cho, S.J., Choi, B.H., Kim, M.Y.: Monitoring of sulfur dioxide residue in commercial medicinal herbs (2007). Report of S.I.H.E., **43**, 208-225 (2007).
3. Gi, S.G. Food Preservatives, Food Journal, Seoul, Korea, pp. 664-669 (2000).
4. Roberts, A.G. and Mcweeny, D.J. The uses of sulphur dioxide in the food industry. *J. Food Technol.,* **7**, 221-238 (1972).
5. Choi, Y.S., Kim, J.K.: A study on residual bleaching agent(SO_2) in herbal drugs. *J. Korean Soc. Hygienic Sciences,* **5**, 71-77 (1999).
6. Kang, K.J., Oh, G.S., Kim, H.I., Choi, Y.H., Kim, Y.J., Chung, Y.C.: Naturallu Occuring of Sulfur Dioxide in Medicinal Herbs(Crude Drug Materials) and Its Origin. *Korean J. Food Sci. Technol.,* **33**, 514-520 (2001).
7. FAO/WHO. Guide to the Safe Use of Food Additives. 2nd Series, (1997).
8. Lee, J.K., Kim, D.B., Lee, S.H., Shin D.S., Ahn, B.W., Yoon, Y.P., Kim, P.Y.: Acute exposure effect of sulfur dioxide on the respiratory tract in rats. *Korean J. of Lab. Ani. Sci,* **11**, 93-102 (1995).
9. Talor SL., Higley NA., Bush RK : Sulfite in foods. *Adv. Food Res.*, **30**, 1-76 (1986).
10. Korea Food & Drug Administration : Korean Food Additives Code, Munyoungsa, seoul, pp. 1013 (2007).

11. Lee, H.G.: Examination of natural sulfur dioxide in chinese herbal medicines. A KFDA Research Paper. (2006).
12. Kim, H.Y., Lee, Y.J., Hong, K.H., Kwon, Y.K., Ko, H.S., Lee, Y.K., Lee, C.W.: Studies on the Contents of Naturally Occurring of Sulfite in Foods. *Korean J. Food Sci. Technol,* **32**, 544-549 (2000).
13. 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).
14. Kim, C.M., Song, B.J., Na, H.S.: Determination of Sulfite Contents in Medicinal Herbs. *J. Korea Soc. Food Sci. Nutr.,* **29**, 375-379 (2000).
15. Oh, C.H., Seo, D.W., Chang, S.Y., Yook, C.S., Lee, J.Y., Chang, S.Y., Ze, K.R., Park, J.Y., Lee, J.P., Seong, R.S., Park, J.Y., Ko, S.K., Lee, P.J.: The Variation of Residual Sulfur Dioxide and Marker Components of Herbal Medicines during Drying Process. *Kor. J. Pharmacogn,* **38**, 299-304 (2007).
16. Jung, W.C., Kim, J.H.: Risk management of sulfur dioxide resdue in herbal medicine. Korea Food & Drug Administration, Seoul, Korea(2004).
17. Korea Food & Drug Administration : KFDA Notification No. 2005-44. (2005).
18. Korea Food & Drug Administration : KFDA Notification No. 2008-3. (2008).
19. Korea Food & Drug Administration : KFDA Notification No. 2009-35. (2009).
20. Korea Food & Drug Administration : KFDA Notification No. 2009-104. (2009).
21. 한국의약품수출입협회 : 한약재감별주해. 도서출판 대영, 한국, pp. 15-38 (2003).
22. Yoon, Y.T., Lee, S.D., Park, A.S., Shin, Y., Kim, H.S., Kim, Y.K., Choi, B.H.: Analysis of Sulfur Dioxide Residue in Commercial Medicinal Herbs in Seoul. *Korean J. Medicinal Crop Sci*., **18**, 345-360 (2010).
23. Han, C.H., Kim, D.G., Kwak, J.E., Han, E.J., Jung, S.J., Kim, B.S., Cho, T.H., Yoon, Y.T., Park, A.S., Kim, E.J., Jung, S.S., Lee, J.A., Cho, S.J., Choi, B.H., Kim, M.Y.: Analysis of sulfur dioxide residue in commercial medicinal herbs(2008). Report of S.I.H.E., **44**, 99-125 (2008).
24. Park, W.H., Park, A.S., Lee, J.M., Yu, I.S., Choi, S.M., Kang, H.G.: Monitoring of residual sulfur dioxide in herbal medicines(II). Report of S.I.H.E., **41**, 232-241 (2005).
25. Seo, C.S., Huang, D.S., Lee, J.K., Ha, H.K., Chun, J.M., Um, Y.R., Jang, S., Shin, H.K.: Concentration of heavy metals, residual pesticides and sulfur dioxide of before/after a decoction. *Kor. J. Herbology,* **23**, 51-58 (2008).
26. Sin, Y.M., Cho, T.Y., Lee, K.S., Kim, S.H., Park, H.J., Leem, D.G., Lee, C.H., Kim, W.S., Chae, K.R., Lee, Y.J., Choi, S.Y.: Studies on the Contents of Occuring Sulfur Dioxide in Herbal Medicines distributed at Market. *J. of the Environmental Sciences,* **13**, 1109-1115 (2004).