pISSN 1229-1153 *J. Fd Hyg. Safety*
Vol. 29, No. 2, pp. 152~157 (2014)
http://dx.doi.org/10.13103/JFHS.2014.29.2.152

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

원산지별 국내 유통 한약재의 이산화황 잔류실태 조사

이아름 · 장설 · 이아영 · 최고야 · 김호경*
한국한의학연구원 한약자원그룹

Monitoring of Sulfur Dioxide Residues in Commercial Herbal Medicines at Domestic by Geographical Origins

Ah Reum Lee, Seol Jang, A Yeong Lee, Goya Choi, and Ho Kyoung Kim*
Herbal Medicine Resources Group, Korea Institute of Oriental Medicine, Daejeon 305-811, Korea
(Received December 6, 2013/Revised February 11, 2014/Accepted April 2, 2014)

ABSTRACT - This study was carried out to investigate the residual sulfur dioxide residues (SO_2) in commercial medicinal herbs in Korea in 2013. Among a total of 116 samples of 11 different kinds of herbs, 71 samples (11 Kinds) were domestic, and 45 samples (10 Kinds) were imported. The residual contents of SO_2 in the samples were determinated by a modified Monier-Williams method. Of the 116 samples, 6 samples (5.2%, 4 Kinds) failed to meet the regulations for sulfur dioxide residues of KFDA in medicinal herbs. Among 6 unsuitable samples, 1 samples (1.4%) were domestic, and 5 samples (11.1%, 3 Kinds) were imported. The highest amount of sulfur dioxide residues was 1546.3 mg/kg (Lycii Fructus) in the domestic samples. Regardless of region, SO_2 contents were not found at Anemarrhenae Rhizoma, Citri Unshius Pericarpium, Eucommiae Cortex, Forsythiae Fructus, Gardeniae Fructus, Leonuri Herba and Lonicerae Folium et caulis. These data will be used as a basic data for the future legislation on the regulation and control of sulfur dioxide of herbal medicines.

Key words **:** commercial medicinal herb, sulfur dioxide, modified Monier-Williams method

국제 시장이 급속히 확장되면서 전 세계적으로 생약의 사용량이 증가하고 대체의학 및 기능성식품의 확대와 발효인삼의 항산화 활성, 목향 추출물의 항비만 효과 등 다양한 생리활성에 관한 보고가 활발해지면서 한약재에 대한 관심이 더욱 높아지고 있다[1,2]. 한약재는 과거 야생에서 채취하여 사용하였으나 한약의 수요가 증가함에 따라 인공재배나 수입품에 의존하여 한약재의 불명확한 수확, 수집, 가공, 운반 등의 과정에서 발생하는 오염이 증가하였다[3]. 특히 한약재는 각 종 동·식물성 약재 및 광물성 등의 천연원료를 약용으로 사용함에 따라 수분이나 보관온도, 미생물이나 충해 등으로 쉽게 오염될 가능성이 많다[4]. 오염을 막기 위한 수단으로 인체에 유해한 화학물질 등의 사용에 대한 안전성이 사회적 문제로 대두되고 있는 실정이다[5]. 한약재의 가공·유통과정에서 절단면의 갈변 방지와 빠른 건조를 위해 유황훈증, 연탄건조 등의 방법을 사용하는데, 이때 발생하는 아황산가스는 무색으로 자극성 있는 냄새를 가진다[6]. 아황산염류는 환원력이 매우 강한 아황산을 만들어 이것이 황산으로 산화될 때 착색물을 환원시켜 강한 표백작용을 하고, Ascorbate oxidase의 활성을 억제하여 항산화 작용을 나타내며 또한 효소에 의한 갈색반응을 촉진하는 Polyphenoloxidase의 저해제로 작용하여 갈변현상을 억제하는 것으로 알려져 있다[2]. 아황산염류는 생체 내에서 빠르게 산화되어 황산염($M^1_2SO_4$)이 되고, 아황산을 유리하여 위장장애를 유발하거나, 특히 아황산 성분에 민감한 일반인 및 천식 환자에게 기관지 수축, 두통, 복통, 구토, 현기증, 발진 등의 과민성 반응 증상을 일으킬 수 있다고 보고 되고있다[7]. Food and Agriculture Organization(FAO)/ World Health Organization (WHO) 에서는 인체에 치명적인 영향을 줄 수 있어 아황산염류의 1일 섭취허용량을 이산화황(SO_2)으로서 0.7 mg/kg 이하로 제한하였고, 미국 Generally Recognized As Safe (GRAS)는 아황산염($M^1_2SO_3$)을 10 mg/kg 이상 함유된 식품의 경우는 잔류량을 표시하도록 의무화하고 있다[8]. 식품의약품안전처에서는 2005년 생약의 안전성을 확보하기 위해 '생약의 잔류이산화황 검사기준 및 시험방법'을 제정 고시하여[9] 한

*Correspondence to: Kim Ho-kyoung, Herbal Medicine Resources Group, Korea Institute of Oriental Medicine, Daejeon 305-811, Korea
Tel: 82-42-868-9502, Fax: 82-42-863-9434
E-mail: hkkim@kiom.re.kr

약재 206품목에 대하여 천연유래 이산화황 함량과 유통되는 한약재의 모니터링 결과를 통해 30~1,500 mg/kg으로 그 양을 제한하기 시작하였다. 2009년 1월 8일부터 보다 강화된 '생약의 잔류이산화황 검사기준 및 시험방법 개정'에 의하여 단계별로 설정되어 있는 생약의 이산화황 검사기준으로 인해 생기는 불량 한약재의 유통 문제[4]와 대상품목을 확대하여 생약의 안전성을 확보하기 위해 265품목에 대한 잔류이산화황 허용기준을 식품과 같은 30 mg/kg으로 통일하여 시행하고 있다[10].

이산화황 함유량에 대한 연구는 천연 유래 이산화황 함유량에 대한 보고[11,12]와 건조방법에 따른 이산화황 잔류량과[13] 잔류이산화황 실태조사에 대한 연구[7,14,15,16]가 보고되었지만, 현재 우리나라에서 한약재의 사용이 증가하고 품목별, 원산지별로 잔류이산화황 편차가 크기 때문에 유통 한약재의 지속적인 모니터링 및 안전 관리가 필요하다.

따라서 본 연구에서는 한약재의 잔류이산화황에 대한 체계적인 모니터링을 위하여 국내에서 생산되거나 수입되어 국내에서 유통되고 있는 한약재의 이산화황 잔류량을 조사하여 한약재의 안전성을 확립하고 효율적인 품질 관리를 위한 자료로 활용하여 소비자에 대한 이산화황의 신뢰성을 확보하고자 한다.

재료 및 방법

재료

전국에 유통되고 있는 국내산 및 수입산 다빈도 한약재[17,18] 중 2013년 3월부터 5월까지 11품목 116건(Table 1)을 대상으로 원산지가 명시되어 있는 건조 한약재를 구입하였다. 116건 한약재는 한국한의학연구원 최고야 박사님으로부터 기원의 진위와 품질상태를 검증받고 Mixer(HMF-3000s, Hanil, Korea)로 분쇄한 후 50 mesh의 체로 쳐서 기밀용기에 보관하여 사용하였다.

Table 1. List of the herbal medicines used for monitoring

Name of herbal medicines	Number of samples	
	Domestic	Imported
Anemarrhenae Rhizoma (지모)	6	6
Citri Unshius Pericarpium (진피)	9	2
Corydalis Tuber (현호색)	4	6
Eucommiae Cortex (두충)	7	4
Forsythiae Fructus (연교)	6	4
Gardeniae Fructus (치자)	5	5
Glycyrrhizae Radix (감초)	5	5
Leonuri Herba (익모초)	10	-*
Lonicerae Folium et Caulis (인동)	6	5
Lycii Fructus (구기자)	6	5
Polygoni Multiflori Radix (하수오)	7	3
Total	71	45

*Herbal medicine is not collected.

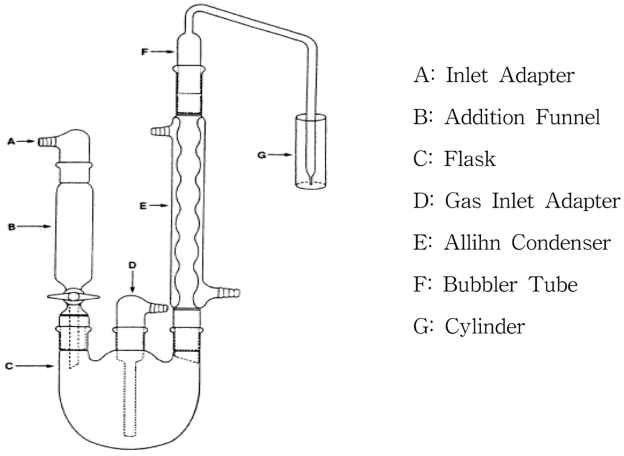

Fig. 1. Apparatus for optimized Monier-Williams method. (KFDA Notification No. 2011-42, 2011).

시약 및 기기

이산화황 분석을 위해 Hydrogen peroxide(H_2O_2, Duksan Chemicals, Korea), Hydrochloric acid(HCl, Samchun chemicals, Korea), Ethyl alcohol(C_2H_6O, Burdick & Jackson, USA)는 특급제품을 희석하여 사용하였다. 적정에는 Methyl red($C_{15}H_{15}N_3O_2$, Junsei chemical, Japan), 0.01 N Sodium hydroxide(NaOH, Samchun chemicals, Korea)를, 회수율 검증을 위해 Sodium sulfite, anhydrous 95.0%(Na_2SO_3, Samchun chemicals, Korea)를 사용하였다. 이산화황 분석을 위해 Kontes사(USA)의 모니어-윌리암스(Monier-Williams) 증류장치(Fig. 1)를 사용하였다.

실험방법

한약재 중 이산화황 분석은 식품의약품안전처 고시법에 따라[19] Monier-Williams 변법에 준하여 정량하였으며, 이는 식품 중의 아황산(H_2SO_3), 차아황산($H_2S_2O_4$) 및 그 염류 등을 산성 상태에서 증류하여 과산화수소 용액으로 포집하고, 생성된 황산을 알칼리로 적정하여 정량하는 방법이다. 모니어-윌리암스 증류장치(Fig. 1), 플라스크(C)에 증류수 400 mL 넣고 분액깔때기(B)에 코크를 잠근 채 4 N 염산용액 90 mL를 넣어두었다. 냉각관(E)에는 물을 공급하고 질소가스를 가스 주입관(D)을 통하여 0.2l L/min의 속도로 주입하면서 15 min 동안 예열한다. 이어서 시료 50 g에 5% 에탄올 100 mL와 분액여두를 통해 4 N 염산 90 mL를 플라스크에 넣은 후 1 h, 45 min 동안 가열하여 메틸레드 지시약이 첨가된 3% 과산화수소용액 30 mL를 넣은 수기에 포집한 후, 이 용액을 0.01 N 수산화나트륨용액으로 황색이 될 때까지 적정하여 아래 식에 의하여 이산화황의 양을 계산하였다. 각 실험치는 각각의 시료를 3회 반복하여 얻은 값을 평균값으로 하여 산출하였다.

Table 2. Recoveries of sulfur dioxide in commercial herbal medicines

Added SO_2 (mg/kg)	Found SO_2 (mg/kg)	Recovery (%)*
30	25.7 ± 4.0	84.6 ± 9.9
50	42.8 ± 2.2	85.5 ± 4.4
100	89.1 ± 2.7	89.1 ± 2.7
200	186.5 ± 5.2	93.3 ± 2.6

*Data are expressed as mean ± S.D. (n = 3).

$$\text{시료 중 이산화황의 농도(mg/kg)} = \frac{320 \times V \times f}{S}$$

V: 0.01 N 수산화나트륨의 소비량(mL)
(0.01 N NaOH 1 mL = 320 μg SO_2)
f: 0.01 N 수산화나트륨의 역가
S: 검체 채취량(g)

회수율

아황산나트륨 표준품으로 30 mg/kg, 50 mg/kg, 100 mg/kg, 200 mg/kg이 되도록 표준용액을 조제하여 아황산염이 검출되지 않은 시료 50 g과 함께 3반복 실험하였고 회수율이 84.6~93.3%로 나타났고(Table 2) 저농도일 때 보다 고농도일 때 더 좋은 회수율을 보였다.

통계처리

통계분석은 Minitab 16(Minitab Inc., Pennsylvania, USA)을 이용하였고, 원산지 간의 유의성과 약재별 함량을 독립표본 t-test로 분석하였다.

결과 및 고찰

원산지 및 품목별 이산화황 잔류량

국내 유통한약재 11종 116품목에 대한 이산화황 잔류량은 Table 3에 나타내었다. 유통한약재의 잔류이산화황 함량을 국내산과 수입산으로 살펴본 결과, 국내산 한약재는 71건 중 1건(1.4%), 71건 평균 함량은 0.5 ± 4.3 mg/kg이고, 수입산 한약재는 45건 중 7건(15.6%), 45건 평균양은 43.9 ± 229.5 mg/kg, 검출범위는 9.9~1,557.3 mg/kg이었다. 원산지별 t-test결과 p-value는 0.05보다 작아 국내산과 수입산의 이산화황 잔류량이 유의하다는 결과를 보였다. 국내산 한약재 71건 중 하수오 1건에서 검출되었고 국내산 하수오 7건의 평균값은 5.2 ± 13.2 mg/kg이고 감초, 구기자, 두충, 연교, 익모초, 인동, 지모, 진피, 치자, 현호색은 검출되지 않았다. 수입산 한약재 45건 중 잔류이산화황 평균 함량은 구기자 5건 309.3 ± 640.2 mg/kg가 가장 높았고, 현호색 6건(52.2 ± 63.2 mg/kg), 감초 5건(12.2 ± 20.4 mg/kg)의 순으로 평균이 높았으며, 두충, 연교, 익모초, 인동, 지모, 진피, 치자, 하수오는 검출되지 않았다. 이산화황이 검출된 8건 중 국산 하수오 1건은 36.7 ± 1.5 mg/kg로 30 mg/kg기준을 초과하였고 중국산 7건 중 5건이 기준을 초과하였는데 초과된 품목의 평균은 감초 1건 50.7 ± 1.8 mg/kg, 구기자 1건 1546.3 ± 8.2와 현호색 3건 118.1 ± 35.3 mg/kg으로 나타났다. 현호색의 경우 국내산 4건은 모두 이산화황이 검출되지 않았으나, 수입산 6건 중 4건에서 각각 11.0 mg/kg, 81.6 mg/kg, 107.0 mg/kg, 165.6 mg/kg의 이산화황이 검

Table 3. Determination of SO_2 residual contents in herbal medicines according to the nation

Herbal medicines	Domestic			Imported		
	n*	n**	Mean ± S.D. (mg/kg)	n*	n**	Mean ± S.D. (mg/kg)
Anemarrhenae Rhizoma	6	0	N.D.	6	0	N.D.
Citri Unshius Pericarpium	9	0	N.D.	2	0	N.D.
Corydalis Tuber	4	0	N.D.	6	4	52.2 ± 63.2
Eucommiae Cortex	7	0	N.D.	4	0	N.D.
Forsythiae Fructus	6	0	N.D.	4	0	N.D.
Gardeniae Fructus	5	0	N.D.	5	0	N.D.
Glycyrrhizae Radix	5	0	N.D.	5	2	12.2 ± 20.4
Leonuri Herba	10	0	N.D.	-***	-	-
Lonicerae Folium et Caulis	6	0	N.D.	5	0	N.D.
Lycii Fructus	6	0	N.D.	5	1	309.3 ± 640.2
Polygoni Multiflori Radix	7	1	5.2 ± 13.2	3	0	N.D.
mean ± S.D.		0.5 ± 4.3			43.9 ± 229.5	
P-value			< 0.05			

*Number of collected samples.
**Number of herbal medicines detected sulfur dioxide.
***Herbal medicine is not collected.

Table 4. Result of detection of sulfur dioxide residue in herbal medicines by modified M.W. method

Herbal medicines	n*	n**	Mean ± S.D. (mg/kg)	Range (mg/kg)
Anemarrhenae Rhizoma	12	0	N.D.	-
Citri Unshius Pericarpium	11	0	N.D.	-
Corydalis Tuber	10	4	36.5 ± 57.8	0~169.7
Eucommiae Cortex	11	0	N.D.	-
Forsythiae Fructus	10	0	N.D.	-
Gardeniae Fructus	10	0	N.D.	-
Glycyrrhizae Radix	10	2	6.5 ± 15.7	0~50.6
Leonuri Herba	10	0	N.D.	-
Lonicerae Folium et Caulis	11	0	N.D.	-
Lycii Fructus	11	1	140.6 ± 451.4	0~1557.3
Polygoni Multiflori Radix	10	1	3.7 ± 11.2	0~38.7
mean ± S.D.			17.4 ± 144.2	
P-value			< 0.05	
F-value			3.0	

*Number of collected samples.
**Number of herbal medicines detected sulfur dioxide.

출되어 특히, 수입산 현호색에 많은 잔류이산화황 함량을 확인할 수 있었다. 이는 Yoon(2010)[2] 등이 서울지역 유통 한약재의 이산화황 잔류실태에서 국산 현호색은 모두 이산화황이 검출되지 않았지만 수입산 현호색에서는 183.0 mg/kg, 251.0 mg/kg로 이산화황이 검출된 것과 유사한 결과를 보였다.

한약재 품목별로 나타난 Table 4 결과를 살펴보면, 잔류이산화황 검출량은 구기자(1,546.3 mg/kg)가 가장 높았고, 현호색(165.6, 107.0, 81.6, 11.0 mg/kg), 감초(50.7, 14.6 mg/kg), 하수오(36.7 mg/kg)의 순으로 높았으며 두충, 연교, 익모초, 인동, 지모, 진피, 치자는 검출되지 않았고 품목별로 일원분석 결과 P-value는 0.05보다 작았다.

이산화황 검출량이 높은 구기자의 경우 Kim(2007)[20] 등의 연구에서 30 mg/kg을 초과한 14건 중 6건이 1,500 mg/kg 이상의 높은 이산화황 함량을 보였고, Han(2008)[14] 등의 연구에서는 구기자 8건의 평균 잔류량이 408.1 mg/kg인 것으로 보고되었다. 하지만 Jung(2011)[4] 등에서 구기자 8건의 평균 잔류량은 5.7 mg/kg, 검출범위는 2.8~10.3 mg/kg으로 나타나 잔류량이 급격히 감소한 것으로 보고되었고 Lee(2013)[21]에서 구기자 9건 중 7건은 검출되지 않았으나, 나머지 2건에서 이산화황이 3,167.9 mg/kg와 2,082.1 mg/kg로 허용기준 30 mg/kg의 약 100배 정도가 검출되었다. 본 연구에서도 구기자 11건 중 1건이 검출되어 이산화황 검출 빈도 는 줄었지만 1건은 1,546.3 mg/kg으로 잔류 허용기준 30 mg/k의 약 50배를 초과하는 이산화황 함량을 보였다. 한약재의 건조방법에 따른 이산화황 잔

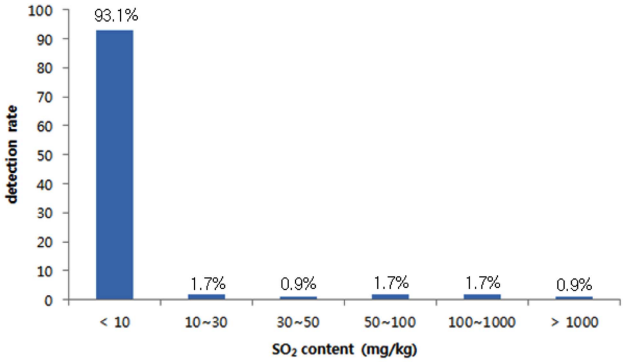

Fig. 2. Distribution of sulfur dioxide residues in commercial herbal medicines.

류량[13]에 따르면, 구기자의 천연 유래 이산화황 양은 10 mg/kg 이하로 검출 한계 미만이고 오븐에서 건조하면 잔류 이산화황이 검출되지 않았다. 그러나 연탄건조 후 많은 이산화황이 검출된 것은 구기자에 함유된 수분의 양이 연탄건조 후 잔류이산화황과의 상관관계를 보여 수분 함량이 많은 한약재가 이산화황의 용해도를 증가시키는 것으로 판단되므로 많은 수분을 포함한 한약재는 건조 과정에 더욱더 지속적인 관리 감독의 필요성이 있다고 사료된다.

이산화황 검출량 백분율과 허용기준 초과실태

측정된 잔류이산화황의 함량에 대한 분포를 보면, 두충 외 107건(93.1%)은 이산화황이 전혀 검출되지 않았고, 이산화황이 검출된 한약재는 8건(6.9%)으로 검출 평균양은 251.7 ± 491.7 mg/kg이었다. 이들의 검출범위는 감초 외 1건(1.7%)은 10~30 mg/kg, 하수오(0.9%)은 30~50 mg/kg, 현호색외 1건(1.7%)은 50~100 mg/kg, 현호색 외 1건(1.7%)은 100~1,000 mg/kg, 구기자 1건(0.9%)은 1,000 mg/kg 초과로 검출되었고, Fig. 2는 잔류이산화황 검출량 백분율 분포도를 나타내었다.

이산화황 허용기준 초과실태는 116건의 한약재 중 108건(93.1%)은 전혀 검출되지 않았고 2건(1.7%)은 30 mg/kg 미만의 함유량을 나타냈으며, 6건(5.2%)은 한약재 이산화황 잔류 허용기준 30 mg/kg을 초과하였다. 본 연구에서 이산화황 잔류량이 30 mg/kg을 초과하는 한약재의 검출율이 5.2%로 나타난 것은 국내 8개 지역의 잔류이산화황 연구결과 222건 중 74건(33.3%)[18], 약령시장 한약재 실태조사 결과 1,158건 중 183건(15.8%)[15]과 서울 유통한약재 1,821건 중 281건(15.4%)[2]의 결과와 비교하였을 때 다소 낮은 결과로 이는 한약재의 보다 강화된 기준적용으로 인한 품질 검사 결과로 판단된다.

이산화황 잔류 허용기준 30 mg/kg에 근거한 원산지별 이산화황 함유량 결과를 Table 5에 나타내었고, 수입산 한약재 45건 중 5건(11.1%)이 국내산 한약재 71건 중 1건(1.4%) 보다 높은 부적합율을 보여 보다 안전한 한약재가

Table 5. Result of detection of sulfur dioxide residues of domestic vs. imported samples

	No. of samples	No. of detected (> 30 mg/kg)	Detection Frequency (%)	Average amount of detected (mg/kg)
Domestic	71	1	1.4	36.7
Imported	45	5	11.1	282.4

유통될 수 있도록 수입 통관시 보다 강화된 검사가 요구되어진다. 잔류허용기준을 초과한 6건의 평균 함량은 331.3 ± 545.0 mg/kg, 검출범위는 35.2~1557.3 mg/kg이고 한약재별로 살펴봤을 때 부적합율이 가장 높게 나타난 현호색(30.0%)과 검출빈도는 낮으나 이산화황 잔류량이 높은 구기자(1,546.3 mg/kg)는 건조과정 시 연탄건조나 유황훈증을 한 것으로 추측된다. 구기자 등과 같이 건조 과정시 이산화황이 유입된 것으로 사료되는 한약재는 검출될 경우 대량 함유된 경우가 많고 건조나 표백의 목적으로 같은 양의 아황산염류를 사용하였더라도 사용부위나 생약 고유의 형태학적 특징에 의해 잔존하고 있는 이산화황의 양에 차이가 있으므로 건조 및 보관방법에서 연탄건조나 유황훈증 등을 규제하기 위한 관리가 필요할 것으로 사료되어진다.

요 약

국내에 유통되고 있는 국산과 수입산 한약재 11종 116건을 대상으로 잔류이산화황에 대한 모니터링을 수행한 결과 108건(93.1%)은 불검출이었고 6건(5.2%)는 이산화황 허용기준치 30 mg/kg을 초과하였고 2건은 30 mg/kg 미만으로 검출되었다. 116건의 이산화황 평균함량은 17.6 ± 144.2 mg/kg이고 최대 검출량은 구기자(1,546.3 mg/kg)이었고 중국산 현호색(66.6%)의 이산화황 검출 빈도가 가장 높게 나타났다. 국내산 한약재는 71건 중 1건(1.4%), 수입산 한약재는 45건 중 7건(15.6%)에서 이산화황이 검출되었고 국내산 1건(36.7 mg/kg)과 수입산 5건(118.1 mg/kg)이 허용기준치를 초과하여 국내산보다 수입산 한약재에 이산화황 잔류량이 많았다.

본 연구를 통해 이산화황 허용기준을 초과하는 부적합율은 다소 낮아지고 있지만 이산화황 허용기준을 초과하는 한약재들 중 일부 한약재에서는 잔류이산화황 함량이 높게 나타났고, 특히 국내산 약재에 비해 수입산 약재는 부적합율이 높게 나왔다. 한약재는 일반적으로 수세 및 가열과정을 거치므로 실제 섭취하는 형태의 탕액에서는 원재료보다 이산화황의 잔류량이 크게 감소하지만 완전히 제거되지는 않으므로 유통되는 한약재의 안전성 확립이 절실히 요구되어진다. 강화된 기준이 정착하여 안전한 한약재가 유통될 수 있도록 수입통관시 특별관리가 요구되며, 보다 적극적인 검사 요주의 품목에 대한 지속적인 잔류이산화황 모니터링이 필요할 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 한국한의학연구원 전통의학 소재 자원 관리 시스템 구축사업(K14142) 및 고유 본초자원의 기원확립(K14415)의 지원으로 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. Heo SK, Cha YY, Kim EG, Cho WH, Lee H, Baik TH, Seo HS, Park HS, Kim BW, Kwon KR, Lee SG, Yoo JS, Sohn YJ, Sun SH, Kang HC and Seo YC.: Determination of heavy metals, sulfur dioxide and residual pepsticides in oriental medical materials at Sangji university oriental medical hospital. *Korean J. Oriental Physiology & Pathology*, **22**, 948-953 (2008).
2. Yoon YT, Lee SD, Park AS, Shin Y, Kim HS, Kim YK and Choi BH.: Analysis of sulfur dioxide residue in commercial medicinal herbs in Seoul (2009). *Korean J. Medicinal Crop Science*, **18**, 345-360 (2010).
3. Cha YY, Heo SK, Kim DG, Baik TH, Seo HS, Park HS, Kim BW, Kwon KR, Lee SG, Yoo JS, Sohn YJ, Sun SH, Cha BC, Seo SH.: Determination of heavy metals and residual pepsticides in oriental medical materials. *Korean J. Oriental Physiology & Pathology*, **21**(1), 226-230 (2007).
4. Kim MK, Hur MH, Lee CH, Jin JS, Jin SK and Lee YJ.: Monitoring of residual sulfur dioxide in herbal medicines. *Kor. J. Pharmacogn*, **35**, 276-282 (2004).
5. Jung SJ, Lee SD, Kim SJ, Jo SA, Kim NH, Jung HJ, Kim HS and Han KY.: Monitoring of sulfur dioxide residue in commercial medicinal herbs in Seoul (2010). *J. Fd Hyg. Safety*, **26**, 435-447 (2011).
6. Sin YM, Cho TY, Lee KS, Kim SH, Park HJ, Leem DG, Lee CH, Kim WS, Chae KR, Lee YJ and Choi SY.: Studies on the contents of occuring sulfur dioxide in herbal medicines distributed at market. *J. of the Environmental Sciences*, **13**, 1109-1115 (2004).
7. Lee HH, Seo JM, Oh MS, Gang IS, Park JJ, Seo KW, Ha DR and Kim ES.: A survey on harmful materials of commercial medical herb in Gwangju area. *J. Fd Hyg. Safety*, **25**, 83-90 (2010).
8. Kang IS, Lee HH, Seo JM, Oh MS, Jeong JH, YU YA, Cho BS, Seo KW, Kim ES and Moon YW.: A survey on safety of commercial fruit teas in Gwangju area. *J. Fd Hyg. Safety*, **26**, 100-106 (2011).
9. Korea Food & Drug Administration: KFDA Notification No. 2005-44 (2005).
10. Korea Food & Drug Administration: KFDA Notification No. 2009-35 (2009).

11. Kim MH, Park SB.: Determination of natural contents of total sulfites in fruits and vegetables by ion chromatography. *Korean J. Food Sci. Technol*, **21**(2), 218-223 (1989).
12. Kim HY, Lee YJ, Hong KH, Kwon YK, Ko HS, Lee YK, Lee CW.: Studies on the contents of naturally occurring of sulfite in foods. *Korean J. Food Sci. Technol*, **32**(3), 544-549 (2000).
13. Oh CH, Seo DW, Yook CS, Lee YJ, Chang SY, Ze KR, Park JY, Lee JP, Seong RS, Park JY, Ko SK and Lee PJ.: The variation of residual sulfur dioxide and marker components of herbal medicines during drying process. *Kor. J. Pharmacogn*, **38**, 299-304 (2007).
14. Han CH, Kim DG, Kwak JE, Han EJ, Jung SJ, Kim BS, Cho TH, Yoon YT, Park AS, Kim EJ, Jung SS, Lee JA, Cho SJ, Choi BH and Kim MY.: Analysis of sulfur dioxide residue in commercial medicinal herbs. *Report of S.I.H.E.*, **44**, 99-125 (2008).
15. Kim HS, Hong YJ, Park WH, Yu IS, Lee CY and Kang HG.: Survey of sulfer dioxide residues in commercial herbal medicines. *Report of S.I.H.E.*, **39**, 19-30 (2003).
16. Kim TH, Jang S, Lee AR, Lee AY, Choi GY, Kim HK.: The analysis of residual pesticides and sulfur dioxide in commercial medicinal plants. *Kor. J. Herbology*, **27**(6), 43-48 (2012).
17. Lee JT.: Research on intake of chinese medicine by Korea. A KFDA Reserch Paper. p.16-22 (2006).
18. Sin YM, Kim JI, Kim WS, Park KS, Kim JM, Chae KR, Cho DH, Kim DB and Kim OH.: Studies on the residual contents of sulfur dioxide in herbal medicines distributed at domestic. *Korean J. Oriental Physiology & Pathology*, **21**, 1039-1044 (2007).
19. Ministry of Food and Drug Safety. The Korean Pharmacopoeia Tenth Edition. MFDS Notification No. 2013-103:1198-1199 (2013).
20. Kim BS, Park AS, Han CH, Kim DG, Shin Y, Kwak JE, Han EJ, Jung SJ, Hwang YS, Kim EJ, Jeang SS, Cho SJ, Choi BH and Kim MY.: Monitoring of sulfur dioxide residue in commercial medicinal herbs. *Report of S.I.H.E.*, **43**, 208-225 (2007).
21. Lee AR, Jang S, Kim TH, Lee AY, Choi GY and Kim HK.: Monitoring of residual sulfur dioxide in herbal medicines distributed at domestic. *Korean J. Medicinal Crop Sci*, **21**(2), 124-129 (2013).