

한약재내 중금속 함량분석 및 물세척 효과

이 승 훈 · ¹최 호 영 · † 박 창 호
경희대학교 환경·응용화학대학, 한의과대학¹
(접수 : 2002. 11. 18., 게재승인 : 2003. 4. 29.)

Determination of Heavy Metal Contents in Oriental Medical Materials and the Effect of Washing

Seung-Hoon Lee, Hoyoung Choi¹, and Chang-Ho Park[†]

College of Environment and Applied Chemistry, Kyung Hee University, Yongin-si, Kyunggi-do 449-701, Korea

¹College of Oriental Medicine, Kyung Hee University, Seoul 130-701, Korea

(Received : 2002. 11. 18., Accepted : 2003. 4. 29.)

Six heavy metals (lead, copper, cadmium, chromium, mercury and arsenic) were analyzed in 9 oriental medical materials (Paeoniae Radix Alba, Zizyphi Fructus, Cnidii Rhizoma, Rehmanniae Radix Preparata, Angelicae Gigantis Radix, Astragali Radix, Glycyrrhizae Radix, Cinnamomi Cortex Spissus, and Zingiberis Rhizoma Crudus) by inductively coupled plasma atomic emission spectrometry (ICP-AES). The heavy metal contents of Zingiberis Rhizoma Crudus and Angelicae Gigantis Radix were 44.0 and 37.3 mg/kg, respectively, which were 1.47 and 1.24 times higher than the guideline set by the Korean Food and Drug Administration (KFDA). Washing with deionized water lowered the heavy metal contents by 20-38%, and reduced levels to below the guidelines set by KFDA.

Key Words : Oriental medical materials, heavy metals, washing, ICP-AES

서 론

급속한 산업화 및 공업화로 인해 배출되는 각종 공해물질 중 에서 카드뮴, 납, 수은, 비소 등과 같은 중금속 물질은 토양에 서 이동성이 적고 축적성이 높기 때문에 토양을 오염시킨다 (1-4). 이러한 중금속은 인체에 대한 독성이 강하기 때문에 중 금속으로 오염된 토양에서 생산된 한약재는 인체에 유해할 수 있다.

국제적으로 설정된 중금속의 섭취허용량은 카드뮴, 수은, 납, 구리 및 비소의 경우 각각 57.4-71.1, 43, 428.4, 3,000-30,000, 3,000 그리고 120,000 $\mu\text{g}/60 \text{ kg person/day}$ 이며(5), 크롬의 경우 50-200 $\mu\text{g}/60 \text{ kg person/day}$ 이다(6). 그러나 국내기준은 한약재 내 중금속 농도의 허용치가 개별 중금속별로 설정되어 있지 않고 총 중금속 농도 30 ppm (mg/kg)으로 설정되어 있다(7).

한약재로부터 중금속을 제거하는 가장 경제적이고 간단한 수처리방법은 물세척일 것이다(8). 따라서 본 연구는 물세척에 의한 중금속 제거 효율성을 분석하였다. 중금속의 함량을 측정하기 위한 대상 약재로서 국내에서 일반인이 흔히 복용하는 한방 상품의 하나인 쌍화탕의 제조에 사용되는 약재를 선정하

였다. 분석 대상 중금속은 음용수 또는 식품에 함유된 중금속 중 특히 인체에 유해하다고 알려진 납, 카드뮴 및 수은(9)과 과 잉으로 섭취할 경우 유해하다고 알려진 비소 및 구리로 하였다(1).

재료 및 방법

사용 약재

본 실험에서 사용된 한약재는 쌍화탕 재료인 백작약 (Paeoniae Radix Alba, 유성), 대조 (Zizyphi Fructus, 영천), 천궁 (Cnidii Rhizoma, 영덕), 숙지황 (Rehmanniae Radix Preparata, 중국산), 당귀 (Angelicae Gigantis Radix, 천양), 황기 (Astragali Radix, 제천), 감초 (Glycyrrhizae Radix, 중국산), 육계 (Cinnamomi Cortex Spissus, 중국산), 생강 (Zingiberis Rhizoma Crudus, 중국산) 이었다(10).

중금속 함량 분석

한약재 내에 함유된 납, 구리, 카드뮴, 크롬, 수은 그리고 비소 의 양을 Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometer (ICP-AES) (Shimazu Co., Japan)를 사용하여 분석 하였다. 분석용 표준용액은 각 중금속의 1000 mg/L 표준용액 (Showa Co., Japan)을 단계별로 희석하여 사용하였다(11). 실험 에 사용한 탈이온수는 초순수제조기(Applied Membranes Inc.,

† Corresponding Author : Department of Chemical Engineering, Kyung Hee University, Yongin-si, Kyunggi-do 449-701, Korea.

Tel: +82-31-201-2531, Fax: +82-31-202-1946

E-mail: chpark@khu.ac.kr

Table 1. Operating conditions of ICP-Emission Spectrometer

Element	Wave length(nm)	Estimated detection limit (µg/L)	Alternate wave length(nm)	Calibration concentration(mg/L)	Upper Limit concentration (mg/L)
Lead	220.35	40	217	10.0	100
Copper	324.75	6	219.96	1.0	50
Cadmium	226.50	4	214.44	2.0	50
Chromium	267.72	7	206.15	5.0	50
Mercury	253.70	2	184.91	1.0	50
Arsenic	193.70	50	189.04	10.0	100

Table 2. Heavy metal contents in the Oriental medical materials before and after washing

Sample	구 분	Lead	Copper	Cadmium	Chromium	Mercury	Arsenic	합 계
Peoniae Radix Alba (백작약)	세척후	5.36±0.61	7.75±0.44	0.94±0.06	4.15±0.88	2.65±0.15	2.28±0.54	23.13
	세척전	7.42±0.92	9.07±0.16	1.24±0.27	6.31±1.65	3.02±0.33	3.86±0.49	30.92
	제거율(%)	27.8	14.6	24.2	34.2	12.3	40.9	25.2
Zizyphi Fructus(대조)	세척후	2.02±0.17	5.85±0.72	0.53±0.09	5.20±0.52	2.15±0.09	2.61±0.32	18.36
	세척전	3.14±0.37	7.63±0.82	0.61±0.06	7.61±1.54	2.89±0.20	3.62±0.68	25.50
	제거율(%)	35.7	23.3	13.1	31.7	25.6	27.9	28.0
Cnidii Rhizoma(천궁)	세척후	1.07±0.34	6.95±0.46	0.52±0.06	5.99±0.75	2.99±0.09	3.45±0.33	20.97
	세척전	1.53±0.38	8.88±0.62	0.85±0.08	7.58±0.87	3.32±0.24	5.25±0.70	27.41
	제거율(%)	30.1	21.7	38.8	21.0	9.9	34.3	23.5
Rehmanniae Radix Preparata(숙지황)	세척후	2.39±0.45	2.16±0.53	0.38±0.13	7.28±1.40	2.99±0.46	2.23±0.46	17.63
	세척전	3.51±0.47	2.85±0.82	0.52±0.05	8.00±1.87	3.49±1.06	3.07±0.59	21.44
	제거율(%)	31.9	24.2	26.9	9.0	14.3	27.4	17.8
Angelicae Gigantis Radix (당귀)	세척후	3.12±0.58	7.02±0.07	1.02±0.17	6.45±0.19	3.29±0.13	4.42±0.09	25.32
	세척전	4.74±0.64	9.27±0.16	1.99±0.39	10.45±0.60	4.27±0.17	6.57±0.35	37.29
	제거율(%)	34.2	24.3	48.7	38.3	23.0	32.7	32.1
Astragali Radix(황기)	세척후	2.58±0.48	5.84±0.31	0.64±0.21	3.10±0.19	2.51±0.26	4.97±0.70	19.64
	세척전	4.21±0.79	6.37±0.63	0.67±0.20	8.42±0.46	3.76±0.27	6.37±0.67	29.80
	제거율(%)	38.7	8.3	4.5	63.2	33.2	22.0	34.1
Glycyrrhizae Radix(감초)	세척후	6.92±0.62	4.91±0.24	0.68±0.17	6.25±0.42	3.19±0.75	1.57±0.26	24.52
	세척전	9.03±0.20	5.80±0.10	0.75±0.22	8.92±0.95	4.52±1.01	2.34±0.50	31.36
	제거율(%)	23.4	15.3	9.3	29.9	29.4	32.9	21.81
Cinnamomi Cortex Spissus(육계)	세척후	2.87±0.39	6.21±0.29	0.72±0.39	3.36±0.43	1.38±0.20	5.49±0.35	20.03
	세척전	3.65±0.84	8.37±1.67	0.90±0.42	8.80±2.10	1.99±0.17	7.92±0.56	31.63
	제거율(%)	21.4	25.8	20.0	61.8	30.7	30.7	36.7
Zingiberis Rhizoma Crudus(생강)	세척후	5.97±0.58	2.95±0.24	4.15±0.90	7.91±0.66	1.79±0.21	3.47±0.31	28.24
	세척전	8.01±0.58	3.58±0.36	5.12±1.07	17.66±1.93	2.45±0.16	7.16±0.26	43.98
	제거율(%)	25.5	17.6	18.9	55.2	26.9	51.5	35.8
평균제거율(%)		29.86	19.46	22.71	38.26	22.81	33.37	

Canada, 모델 L-12540A-PT)로 제조하여 사용하였다. ICP-Atomic Emission Spectrometer의 작동조건은 Table 1과 같다(12, 13).

각 한약재 적당량을 100 °C에서 24시간 건조한 후 막자사발에서 분쇄하고 그 중에서 1g씩을 취하여 실험에 사용하였다

(12). 세척 전후의 중금속 함량을 비교하기 위하여 세척하지 않은 한약재와 탈이온수로 세척한 한약재 각 1g의 중금속 함량을 분석하였다. 각 실험은 3회 반복하였다.

세척은 시료 1g을 탈이온수 100 mL가 들어 있는 비이커에서 30초간 1회 세척하였다. 세척시간을 짧게 한 이유는 세척으로

인해 한약재의 유효성분이 손실되지 않게 하기 위해서였다. 세척된 한약재를 채로 걸러서 자기도가나에 넣고 50℃에서 24시간 건조하였다. 세척으로 인한 중금속 제거율은 다음 식을 이용하여 계산하였다.

$$\text{중금속 제거율} = \frac{\text{세척 전 중금속 함량} - \text{세척 후 중금속 함량}}{\text{세척 전 중금속 함량}}$$

한약재의 특성상 유기물이 많이 포함되어 있는 것을 고려하여 U.S. Standard Methods 3038F를 사용하여 분석 전에 다음과 같이 염산-질산 전처리 후 분석하였다(14). 건조 및 분쇄된 한약재 1 g을 자기도가나에 넣고 처음에는 주의하여 약하게 가열한 후 550℃로 강열하여 회화하였다. 상온에서 냉각 후 회화된 샘플을 250 mL 비이커에 넣고 100 mL의 탈이온수를 가한 후 14.3 N 질산(first grade, Duksan Co., Korea) 3 mL를 넣은 다음 가열판에서 서서히 가열하여 액량이 약 15 mL가 될 때까지 증발농축하고 상온에서 냉각하였다. 다시 14.3N 질산 5 mL를 넣고 시계접시로 비이커를 덮은 상태에서 서서히 가열하여 부피가 5 mL 정도로 감소할 때까지 증발농축하고 상온에서 냉각하였다. 여기에 11.3 N 염산(extra pure, Duksan Co., Korea) 10 mL와 탈이온수 15 mL를 넣고 약 15분간 가열하여 잔유물을 녹인 다음 시계접시와 비이커의 기벽을 세척한 탈이온수를 합하였다. 얻어진 시액이 모두 맑고 투명하였기 때문에 여과하지 않았다. 모든 초자는 오염을 방지하기 위해 3.6 N 질산용액에 24시간 침지시킨 후, 탈이온수로 3회 세척한 다음 건조기에서 건조시켜 사용하였다(15).

결과 및 고찰

세척 전 한약재 내의 중금속 총량 분석

각 한약재 시료에 함유된 납, 구리, 카드뮴, 크롬, 수은 및 비소의 농도는 0.61-17.7 (mg 중금속/kg 한약재)였다 (Table 2). 6가지 중금속의 총량은 백작약 30.9, 대조 25.5, 천궁 27.4, 숙지황 21.4, 당귀 37.3, 황기 29.8, 감초 31.4, 육계 31.6 및 생강 44.0 mg/kg으로서 숙지황과 대조는 식약청 기준인 30 ppm 보다 낮았으나 생강과 당귀의 경우에는 각각 1.47배 및 1.24배였으며 기타 한약재는 기준치와 거의 동등하거나 5% 이내에서 초과하였다.

약재의 사용부위에 따라 중금속의 함량을 비교하면 토양과 직접 접촉하지 않는 과실 부분을 사용하는 대조의 경우 가장 낮은 값을 나타내었고, 수피를 사용하는 육계의 경우 근 또는 근경을 사용하는 나머지 약재와 큰 차이를 보이지 않았다. 숙지황의 경우에는 근경을 가공하는 과정에서 중금속이 일부 제거되는 것으로 보인다.

9가지 약재에 대한 평균 함유량은 납 5.03, 구리 6.87, 카드뮴 1.52, 크롬 9.31, 수은 3.30 그리고 비소 5.13 mg/kg 이었고 이 평균 중금속 함량에 비해 1.5 배 이상의 함량을 보인 경우는 생강 내의 카드뮴(3.37 배), 크롬(1.90 배) 및 납(1.59 배), 감초 내의 납(1.80 배), 육계 내의 비소(1.54 배) 이었다. 평균함유량 보다 많이 검출된 경우는 크롬의 경우 당귀에서 1.12 배, 구리의 경우 당귀, 백작약, 천궁, 육계 및 대조에서 각각 1.35, 1.32, 1.29,

1.22 및 1.11 배, 납은 백작약에서 1.48 배 이었다. 또한 비소는 생강, 당귀, 황기 및 천궁에서 각각 1.40, 1.28, 1.24 및 1.02 배, 수은은 감초, 당귀, 황기, 숙지황 및 천궁에서 각각 1.37, 1.29, 1.14, 1.06 및 1.01배, 카드뮴은 당귀에서 1.31배 이었다.

세척 후 한약재 내의 중금속 분석

물세척 후 아홉 가지 한약재내의 평균 중금속 함량은 세척전과 비교하여 19.5-38.3% 감소하였다 (Table 2). 세척으로 인한 제거율이 가장 큰 중금속은 크롬(38.3%)이었으며 비소 33.4%, 납 29.9%, 수은 22.7%, 카드뮴 22.2% 및 구리 19.5%의 순서였다.

물 세척 후 6가지 중금속의 총량은 백작약 23.1, 대조 18.4, 천궁 21.0, 숙지황 17.6, 당귀 25.3, 황기 19.6, 감초 24.5, 육계 20.0, 생강 28.2 mg/kg으로서 모두 식약청 기준인 30 ppm보다 낮았다.

요약

쌍화탕의 재료로 사용되는 9가지 한약재에 함유된 6가지 인체에 유해한 중금속 함유량은 생강과 당귀의 경우 식약청 기준치인 30 ppm의 1.47배와 1.24배 이었고 기타 한약재는 기준치와 거의 동등하거나 5% 이내에서 초과하였다. 가장 간단한 수치법인 물세척만으로 중금속이 20-38% 제거되었고 따라서 모든 실험대상 약재에 대하여 중금속 함량을 식약청 기준치보다 낮출 수 있었다.

사사

본 연구는 보건복지부가 지원하는 신약개발지원사업 중 천연물신약원천기술개발연구과제(01-PJ2-PG6-01NA01-0002)의 일부로 수행되었습니다.

REFERENCES

1. Massaro, E. J. (1990), Handbook of Human Toxicology, pp149-188, Boca Raton Press, New York.
2. Rhee, J. S. (1995), A Study on the Content of Heavy Metal in Domestic or Foreign Oriental Medicine by means of Quantitative Analytical Method, M.S. Thesis, Dept. of Oriental Medicine, Kyung Hee University, Seoul, Korea.
3. Park, C.Y. (1987), A Study on Heavy Metal and Residual Pesticide in Oriental Medicine, M.S. Thesis, Dept. of Oriental Medicine, Kyung Hee University, Seoul, Korea.
4. Kim, M. M. (1985), A Study on the Heavy Metal Contents in the Soils and Vegetables, M.S. Thesis, Dept. of Environmental Science, Han Yang University, Seoul, Korea.
5. FAO/WHO (1984), Joint FAO/WHO Food Standards Programme, Codex Alimentarius X VII (Contaminants), Food And Agriculture Organization of The United Nations/World Health Organization, Rome.
6. Maurice, E. S. and R. Y. Vernon (1988), Modern Nutrition in Health and Disease, 7th., Lea & Febiger, Philadelphia.
7. K.F.D.A. (1998), A notice from 1998-29, Korea Food and Drug Administration, Seoul, Korea.
8. Park, C. H. and S. I. Kang (2002), Processing Technology of Medicinal Herbs, pp103-139, Chung-Mun-Gak Press, Seoul, Korea.
9. Tripathi, R. M., R. Raghunath, V. N. Sastry, and T. M. Krishnamoorthy

- (1999), Daily intake of heavy metals by infants through milk and milk products, *The Science of the Total Environment* **227**, 229-235.
10. Kim, K. J. (1999), Dong Eui Bo Gam, p1176, Bub-In Press, Seoul, Korea
 11. Kim, J. H., Chough, N. J. and S. B. Park (1989), Studies on the heavy metals of common restaurant meals, *J. Kor. Soc. Food Nutr.* **18**, 316-320.
 12. K.I.O.M. (1998), Studies on security of quality control and safety in traditional medicine herbs, '98, pp74-100, Korea Institute of Oriental Medicine, Seoul, Korea
 13. Ha, Y. D. and I S. Lee (1990), Investigation of heavy metal contents in *Ganoderma lucidum* (Fr.) Karst, *J. Kor. Soc. Food Nutr.* **19**, 187-193.
 14. APHA (1998), Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, 20th ed., Methods 3030F, American Public Health Association, Washington D.C.
 15. Komarnick, G. J. K. (2000), Tissue, sex and age specific accumulation of heavy metals (Zn, Cr, Pb, Cd) by populations of the mole (*Talpa europaea* L.) in a central urban area, *Chemosphere* **41**, 1593-1602.