

## 유통 한약재의 이산화황 함유량에 관한 연구

신영민·조태용·이광수·김성훈·박홍재<sup>\*\*</sup>·임동길·

이창희·김우성·채갑용·이영자·최수영

부산지방식품의약품안전청, '서라벌대학 관광호텔조리과, "인제대학교 환경공학부

(2004년 8월 26일 접수; 2004년 11월 30일 채택)

## Studies on the Contents of Occuring Sulfur Dioxide in Herbal Medicines distributed at Market

Yeong-Min Sin, Tae Yong Cho, Kwang Soo Lee, Sung Hun Kim\*, Heung-Jai Park\*\*,

Dong Gil Leem, Chang Hee Lee, Woo Seong Kim, Kab Ryong Chae,

Young Ja Lee and Soo Young Choi

Busan Regional Food & Drug Administration, Busan 608-829, Korea

\*Dept. of Culinary Arts, Sorabol College, Gyeongju 780-711, Korea

\*\*School of Environmental Science and Engineering, Inje University, Gimhae 621-749, Korea

(Manuscript received 26 August, 2004; accepted 30 November, 2004)

This study was investigated the residual contents of sulfur dioxide on the 373 kinds of herbal medicine distributed from Korea, China, and Japan. A modified Monier-Williams method was described for the determination of SO<sub>2</sub> contents in herbal medicines. The residual contents of SO<sub>2</sub> were not detected at 221 products(59.8%) in total 373 products. Regardless of region, SO<sub>2</sub> contents were not found at Farfarae Flos, Zizyphi Spinosi Semen, Castanea crenata, and Strychni Ignatii Semen. But it's found at Asparagi Radix, Codonopsis Radix, Lilii Bulbus, and Kaempferiae Rhizoma of every region collected the samples. Also, SO<sub>2</sub> contents were not detected at the herbal medicines which collected cultural fields of dometic. SO<sub>2</sub> contents ranged 11~3990 mg/kg(mean 152 mg/kg) at domestic samples, 11~3440 mg/kg(mean 603 mg/kg) at imported samples. After treated with water wash and hot water extraction, the reduction rates of sulfur dioxide were appeared with 24.4%~68.7% and 83.8%~100.0%, respectively. These data will be used to establish a criteron of residual sulfur dioxide in herbal medicines.

Key Words : Herbal medicines, Bleaching agent, Sulfur dioxide, Modified Monier-Williams method

### 1. 서 론

아황산염류는 환원력이 매우 강한 아황산을 만들어 이것이 황산으로 산화되는 작용을 이용하여 보존료, 표백제, 항산화제 등으로서 많은 분야에서 널리 사용되어 왔으며, 이산화황으로서 규제되고 있다<sup>1~3)</sup>. 한약재의 경우에 있어서는 가공·유통과정에서 색택을 좋게 하며 빠른 건조를 위해 연탄건조, 유황훈증 등의 방법을 사용하는 것으로 조사된 바 있으며, 또한 한약재의 갈변이나 총해 방지 등의 목적으로 이산화황으로 처리하여 이산화황이 잔류되고 있다.

Corresponding Author : Yeong-Min Sin, Busan Regional Food & Drug Administration, Busan 608-829, Korea  
Phone : +82-51-610-6276  
E-mail : sinym@kFDA.go.kr

현재, 우리나라 식품첨가물공전에서는 무수아황산(sulfur dioxide), 산성아황산나트륨(sodium bisulfite), 아황산나트륨(sodium sulfite), 차이황산나트륨(sodium hydrosulfite), 메타중아황산나트륨(sodium metabisulfite), 메타중아황산나트륨(potassium metabisulfite)으로 6종의 아황산염류가 고시되어 있으며<sup>4)</sup>, 미국에서는 아황산염류가 1959년 GRAS(Generally Recognized As Safe) 물질로 수재되어 식품에 사용하도록 하고 있다<sup>5)</sup>. 또한, 한약재의 이산화황 잔류량에 대해서는 기준이 설정되지 않은 상태이며, 식품으로 수입되는 한약재에 대해서만 기준이 설정되어 있으며, 한약(생약)규격집<sup>6)</sup>에서는 이산화황의 잔류기준을 10ppm이하로 규정하고 있으나, 한약재에 대한 이산화황의 사용 규정이 별도로 정하여 지지 않

고 있다.

이산화황 함유량에 대한 연구는 천연 유래 이산화황 함유량에 대한 보고<sup>7~9)</sup>, 이산화황 함유량 최적 분석방법을 설정하기 위하여 모니어윌리암스변법, 개량 랭킹법, 이온크로마토그래피법 등을 비교한 것<sup>7,10~13)</sup>, 한약재에 대해서는 몇 품목의 한약재에 대한 모니터링을 실시한 경우<sup>14)</sup>는 있지만, 동북아 3나라에서 유통되고 있는 한약재의 이산화황 함유량을 조사한 것은 거의 없는 실정이다. 따라서 본 연구에서는 국내, 중국 및 일본에서 유통 중인 한약재에 함유되어 있는 이산화황 함유량을 조사하고, 한약재를 “탕”으로 음용하는 것을 감안하여 약탕기로 한약액을 조제하여 이산화황 함유량을 조사하여 이를 자료를 토대로 유통되는 한약재의 안전성을 확립하고 관련 허용기준을 설정하는데 기초자료로 활용하고자 한다.

## 2. 재료 및 방법

### 2.1. 시약 및 재료

실험에 사용된 한약재는 일본의 동경, 오사카(2지역), 중국의 성도, 서안 및 안국(3지역)과 국내 전주, 금산, 제천, 서울, 봉화, 광주, 대구 및 부산(8지역)에서 유통되고 있는 30품목의 한약재를 수거하였다 (Table 1). 한약재 자체의 이산화황 함유량을 조사하기 위해 재배중인 한약재를 국내 7지역 10품목 16종을 수집하였다. 이산화황 종류장치는 Kontes glass co.사에서 구입하였다. 한약액(탕액) 조제에는 대웅 전기산업(주)(대웅약탕기, DWP-3000M)의 제품을 구입하여 사용하였다. 과산화수소는 Sigma co.사의 제품을 사용하였으며 그 외 사용된 모든 시약은 모두 특급을 사용하였다.

Table 1. List of herbal medicine collected

| Korean  | Name of herbal medicines   | Family Name                   |
|---------|----------------------------|-------------------------------|
| English |                            |                               |
| 승마      | Cimicifugae Rhizoma        | 미나리아재비과, <i>Ranunculaceae</i> |
| 오약      | Linderae Radix             | 녹나무과, <i>Lauraceae</i>        |
| 천문동     | Asparagi Radix             | 백합과, <i>Liliaceae</i>         |
| 원지      | Polygalae Radix            | 마디풀과, <i>Polygalaceae</i>     |
| 관동화     | Farfarae Flos              | 국화과, <i>Compositae</i>        |
| 위령선     | Clematis Radix             | 미나리아재비과, <i>Ranunculaceae</i> |
| 파극천     | Morinda Radix              | 꼭두서니과, <i>Rubiaceae</i>       |
| 해방풍     | Glehniae Radix Cum Rhizoma | 미나리과, <i>Umbelliferae</i>     |
| 황정      | Polygonati Rhizoma         | 백합과, <i>Liliaceae</i>         |
| 감국      | Chrysanthemi Indici Flos   | 국화과, <i>Compositae</i>        |
| 백자인     | Thujae Orientalis Semen    | 측백나무과, <i>Cupressaceae</i>    |
| 도인      | Persicae Semen             | 장미과, <i>Rosaceae</i>          |
| 백급      | Bletillae Tuber            | 난초과, <i>Orchidaceae</i>       |
| 방풍      | Saposhnikoviae Radix       | 미나리과, <i>Umbelliferae</i>     |
| 산조인     | Zizyphi Spinosi Semen      | 갈매나무과, <i>Rhamnaceae</i>      |
| 연자육     | Nelumbinis Semen           | 수련과, <i>Nymphaeaceae</i>      |
| 빈랑      | Arecae Semen               | 야자과, <i>Palmae</i>            |
| 당삼      | Codonopsis Radix           | 도라지과, <i>Campanulaceae</i>    |
| 육리      | Pruni Japonicae Semen      | 장미과, <i>Rosaceae</i>          |
| 백합      | Lilii Bulbus               | 백합과, <i>Liliaceae</i>         |
| 저령      | Polyporus                  | 잔나비결상과, <i>Polyporaceae</i>   |
| 현삼      | Scrophulariae Radix        | 현삼과, <i>Scrophulariaceae</i>  |
| 전호      | Peucedani Radix            | 미나리과, <i>Umbelliferae</i>     |
| 속단      | Phlomidis Radix            | 꿀풀과, <i>Labiateae</i>         |
| 백두구     | Amomi Rorundi Fructus      | 생강과, <i>Zingiberaceae</i>     |
| 천련자     | Meliae Toosendan Fructus   | 멀구슬나무과, <i>Meliaceae</i>      |
| 산내      | Kaempferiae Rhizoma        | 생강과, <i>Zingiberaceae</i>     |
| 영지      | Ganoderma                  | 잔나비결상과, <i>Polyporaceae</i>   |
| 건율      | <i>Castanea crenata</i>    | 참나무과, <i>Fagaceae</i>         |
| 보두      | Strychni Ignatii Semen     | 마전자과, <i>Loganiaceae</i>      |

## 2.2. 이산화황 측정

이산화황 함유량은 모니어-윌리암스법<sup>15,16)</sup>에 따라 정량하였다. 모니어 윌리암스 중류장치를 이용하여 플라스크에 중류수 400mL와 시료 약 10~50g에 5% 에탄올 100mL를 수회에 걸쳐 흔들어 넣고 냉각관에는 circulator를 통해 10°C로 유지하였으며, 질소 가스를 0.2 ℓ/min 속도로 주입하면서 15분 동안 예열하였다. 이어서 분액여두를 통해 플라스크에 4N 염산 90mL를 넣은 다음 1시간 45분간 가열하여 메틸레드 지시약이 첨가된 3% 과산화수소용액 30mL가 첨가된 수기에 이산화황을 포집하였다. 이 용액을 0.01N 수산화나트륨용액으로 적정하여 아래식에 의하여 이산화황의 양을 계산하였다. 각 실험치는 각각의 시료를 3회 반복하여 얻은 값을 평균값으로 하여 산출하였다.

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

V : 0.01N NaOH의 소비량(mL)

f : 0.01N NaOH의 역가

S : 시료의 양(g)

## 2.3. 수세 및 가열에 따른 이산화황 경시변화 관찰

이산화황이 많이 검출된 시료 10품목을 선정하여 수세에 따른 이산화황의 함유량 변화를 관찰하였다. 수세과정은 시료 약 5g을 삼각플라스크에 취하여 중류수 300mL를 넣어서 손으로 1분간 진탕(30rpm)하였다. 수세과정을 1회, 3회, 5회 반복하여 이산화황 경시변화를 관찰하였다.

가열에 따른 이산화황 경시변화를 관찰하기 위해서 약탕기를 사용하여 시료 약 5g을 취해 중류수 800mL를 넣은 후 한약 1첩을 달이는 방법으로 남은 양이 200~300mL이 될 때까지 150분 가열후 이산화황 잔류량을 검사하였다. 1, 3, 5회 수세후 상기조건으로 가열하여 이산화황 잔류량을 검사하였다. 각 실험치는 각각의 시료를 3회 반복하여 얻은 값을 평균값으로 하여 산출하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 회수율

회수율 실험은 표준품(Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>)를 대상으로 한 결과, 평균 90%이상의 높은 결과를 얻었다.

### 3.2. 이산화황 함유량

한약재를 대상으로 조사한 이산화황 잔류량은 Table 2~5와 같다. 총 373종 중 221종에서 이산화황 함유량이 불검출(59.8%)로 나타났고, 품목별로 이산화황 검출 양상을 살펴본 결과 관동화, 산조인,

전율, 및 보두(4품목)에서는 수거지역에 관계없이 불검출이었으나, 천문동, 당삼, 백합 및 산내(4품목)의 경우 수거지역 모두에서 검출되었다(Table 2~4). 이산화황 검출율은 500 mg/kg 이하는 29.2%, 500~1,000 mg/kg는 7.0%, 1,000~2,000 mg/kg는 2.4%, 2,000~3,000 mg/kg는 0.5%, 3,000 mg/kg 이상은 1.6%로 나타났다. 위령선 : 60 mg/kg, 파극천 : 20 mg/kg, 백자인 : 15 mg/kg, 도인 : 59 mg/kg, 저령 : 63 mg/kg, 현삼 : 62 mg/kg 및 천련자 : 15 mg/kg으로 수거지역 평균 100 mg/kg 미만으로 나타났으며, 천문동 : 698 mg/kg, 해방풍 : 980 mg/kg, 백급 : 633 mg/kg, 연자육 : 1,487 mg/kg, 당삼 : 985, 백합 : 738 및 영지 : 1,210 mg/kg으로 나타나 다른 시료에 비해 이산화황 함량이 상당히 높은 것으로 나타났다. 중국 서안의 감국, 연자육 및 당삼, 성도의 당삼 및 백합, 서울의 감국에서 3,000 mg/kg 이상의 많은 이산화황을 함유하고 있었다.

지역별 수거품목에 대한 이산화황이 검출된 품목 비율을 살펴본 결과(Table 5), 중국의 안국 71%, 서안 57% 및 성도 50% 순으로 가장 많았고, 국내의 광주 29%, 일본의 동경 30% 및 국내의 제천 31% 순으로 가장 낮았다. 지역별 이산화황 평균 검출량 면에서는 중국의 서안 1,068 mg/kg로 가장 높았고 그 다음이 성도 789 mg/kg, 국내의 서울 587 mg/kg 등으로 나타났으며, 국내 대구의 경우 139 mg/kg으로 가장 낮게 나타났다. 중국 서안의 경우 전 품목중 2,000 mg/kg 이상의 많은 검출량을 보인 감국(3,230 mg/kg), 백급(2,004 mg/kg), 연자육(3,377 mg/kg) 및 당삼(3,077 mg/kg)으로 인해 높은 평균치를 보였다.

국내 유통 한약재의 경우 전체적으로 11~3,990 mg/kg 범위에서 평균 340 mg/kg 이었으며, 국외 유통 한약재의 경우 11~3,440 mg/kg 범위에서 평균 603 mg/kg으로 나타나 국내 유통 한약재에 비해 약 2배 가량 높게 나타났으며, 전체 평균 검출량이 460 mg/kg으로 나타났다.

### 3.3. 자연함유량

한약재 자체의 이산화황 함유량을 파악코자 국내 재배중인 한약재 16종(황정, 해방풍, 관동화, 천련자, 승마, 당삼, 위령선, 현삼, 천문동, 감국)을 7지역(울진, 식약청 옥천재배장, 소록도, 태백, 진안, 의성, 덕산)에서 수거하여 검사한 결과, 모두 이산화황이 검출되지 않아 이를 품목에 대하여서는 한약재 자체의 이산화황 함유량은 거의 없음을 알 수 있었다.

### 3.4. 수세 및 가열에 따른 이산화황 경시변화 관찰

일반적으로 유통중인 한약재는 달여서 탕액으로

신영민·조태용·이광수·김성훈·박홍재·임동길·  
이창희·김우성·채갑용·이영자·최수영

Table 2. Determination of SO<sub>2</sub> residual contents in imported herbal medicines by modified M.W. method

| Herbal medicines           | Conc.(ppm)        | Tokyo | Osaka | Chundu | Xi'an | Ankuo |
|----------------------------|-------------------|-------|-------|--------|-------|-------|
| Cimicifugae Rhizoma        | N.D. <sup>a</sup> | 11    | 34    | 348    | 128   |       |
| Linderae Radix             | 23                | N.D.  | 194   | 445    | 344   |       |
| Asparagi Radix             | 1185              | 122   | 947   | 1487   | 533   |       |
| Polygalae Radix            | 20                | N.D.  | 269   | N.D.   | N.D.  |       |
| Farfarae Flos              | N.D.              | N.D.  | N.D.  | N.D.   | N.D.  |       |
| Clematis Radix             | N.D.              | N.D.  | 11    | 16     | N.D.  |       |
| Morindae Radix             | N.D.              | -     | 20    | N.D.   | N.D.  |       |
| Glehniae Radix Cum Rhizoma | N.D.              | N.D.  | 947   | 1202   | 790   |       |
| Polygonati Rhizoma         | N.D.              | 106   | 463   | N.D.   | 207   |       |
| Chrysanthemi Indici Flos   | 18                | N.D.  | N.D.  | 3230   | N.D.  |       |
| Thujae Orientalis Semen    | N.D.              | N.D.  | 14    | N.D.   | N.D.  |       |
| Persicae Semen             | N.D.              | N.D.  | 59    | N.D.   | N.D.  |       |
| Bletillae Tuber            | N.D.              | N.D.  | N.D.  | 2004   | 444   |       |
| Saposhnikoviae Radix       | N.D.              | N.D.  | N.D.  | N.D.   | 35    |       |
| Zizyphi Spinosi Semen      | N.D.              | N.D.  | N.D.  | N.D.   | N.D.  |       |
| Nelumbinis Semen           | N.D.              | N.D.  | 2489  | 3377   | N.D.  |       |
| Arecae Semen               | N.D.              | N.D.  | N.D.  | 67     | 207   |       |
| Codonopsis Radix           | 11                | 1515  | 3414  | 3077   | 1253  |       |
| Pruni Japonicae Semen      | 13                | 588   | 54    | 636    | N.D.  |       |
| Lilii Bulbus               | 17                | 261   | 3440  | 852    | 833   |       |
| Polyporus                  | N.D.              | 37    | 117   | N.D.   | N.D.  |       |
| Scrophulariae Radix        | N.D.              | 34    | 50    | 19     | 31    |       |
| Peucedani Radix            | N.D.              | N.D.  | 736   | 38     | 68    |       |
| Phlomidis Radix            | - <sup>b</sup>    | 863   | 578   | N.D.   | 52    |       |
| Amomi Rorundi Fructus      | -                 | 90    | N.D.  | N.D.   | N.D.  |       |
| Meliae Toosendan Fructus   | -                 | 14    | N.D.  | 21     | N.D.  |       |
| Kaempferiae Rhizoma        | -                 | 134   | 732   | 273    | 81    |       |
| Ganoderma                  | -                 | -     | 1210  | N.D.   | N.D.  |       |
| Castanea crenata           | -                 | -     | -     | -      | -     |       |
| Strychni Ignatii Semen     | -                 | -     | -     | -      | -     |       |

<sup>a</sup>N.D. : the calculated values less than 10 ppm.

<sup>b</sup>- : herbal medicine is not collected.

Table 3. Determination of SO<sub>2</sub> residual contents in domestic herbal medicines by modified M.W. method

| Herbal medicines           | Conc.(ppm)        | Chunju | Keumsan | Jecheun | Seoul | Bongwha | Kwangju | Daegu | Busan |
|----------------------------|-------------------|--------|---------|---------|-------|---------|---------|-------|-------|
| Cimicifugae Rhizoma        | 923               | N.D.   | N.D.    | N.D.    | 524   | N.D.    | N.D.    | N.D.  | 97    |
| Linderae Radix             | 36                | 35     | 191     | 29      | 156   | 66      | 13      | 79    |       |
| Asparagi Radix             | 624               | 788    | 1185    | 475     | 510   | 498     | 462     | 259   |       |
| Polygalae Radix            | 13                | 188    | 273     | 149     | 284   | N.D.    | 97      | 19    |       |
| Farfarae Flos              | N.D. <sup>a</sup> | N.D.   | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  |       |
| Clematis Radix             | 203               | N.D.   | N.D.    | N.D.    | 11    | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Morindae Radix             | N.D. <sup>b</sup> | N.D.   | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Glehniae Radix Cum Rhizoma | N.D.              | -      | N.D.    | -       | -     | -       | -       | -     |       |
| Polygonati Rhizoma         | N.D.              | N.D.   | N.D.    | 11      | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  | 159   |
| Chrysanthemi Indici Flos   | 1056              | N.D.   | 625     | 3990    | N.D.  | 600     | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Thujae Orientalis Semen    | N.D.              | 11     | N.D.    | 19      | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Persicae Semen             | N.D.              | N.D.   | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Bletillae Tuber            | N.D.              | N.D.   | N.D.    | 576     | 108   | N.D.    | 31      | N.D.  |       |
| Saposhnikoviae Radix       | N.D.              | N.D.   | N.D.    | 304     | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Zizyphi Spinosi Semen      | N.D.              | N.D.   | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Nelumbinis Semen           | N.D.              | N.D.   | 70      | N.D.    | N.D.  | 13      | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Arecae Semen               | N.D.              | 46     | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Codonopsis Radix           | 729               | 311    | 727     | 183     | 446   | 443     | 346     | 353   |       |
| Pruni Japonicae Semen      | 93                | 107    | 374     | 28      | 74    | N.D.    | 31      | 36    |       |
| Lilii Bulbus               | 419               | 435    | 302     | 1141    | 528   | 146     | 294     | 932   |       |
| Polyporus                  | 68                | 11     | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | 57      | 90    |       |
| Scrophulariae Radix        | 24                | N.D.   | N.D.    | 138     | 95    | 129     | 44      | 51    |       |
| Peucedani Radix            | N.D.              | N.D.   | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  |       |
| Phlomidis Radix            | 16                | N.D.   | 160     | N.D.    | 730   | 969     | 12      | 485   |       |
| Amomi Rorundi Fructus      | N.D.              | N.D.   | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  |       |
| Meliae Toosendan Fructus   | N.D.              | N.D.   | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  |       |
| Kaempferiae Rhizoma        | -                 | 861    | -       | -       | -     | -       | -       | -     |       |
| Ganoderma                  | N.D.              | N.D.   | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Castanea crenata           | N.D.              | N.D.   | N.D.    | N.D.    | -     | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |
| Strychni Ignatii Semen     | N.D.              | N.D.   | N.D.    | N.D.    | -     | N.D.    | N.D.    | N.D.  | N.D.  |

<sup>a</sup>N.D. : the calculated values less than 10 ppm.

<sup>b</sup>- : herbal medicine is not collected.

유통 한약재의 이산화황 함유량에 관한 연구

Table 4. Determination of SO<sub>2</sub> residual contents in the various herbal medicines by modified M.W. method

| No.   | Herbal medicines           | Conc.(ppm) | Imported       |                 | Domestic |          | Total           |         |
|-------|----------------------------|------------|----------------|-----------------|----------|----------|-----------------|---------|
|       |                            |            | n <sup>a</sup> | SO <sub>2</sub> | Mean     | n        | SO <sub>2</sub> | Mean    |
| 1     | Cimicifugae Rhizoma        | 4          | 11~348         | 130             | 3        | 97~923   | 515             | 7 295   |
| 2     | Linderae Radix             | 4          | 23~445         | 251             | 8        | 13~191   | 76              | 12 134  |
| 3     | Asparagi Radix             | 5          | 122~1487       | 855             | 8        | 259~1185 | 600             | 13 698  |
| 4     | Polygalae Radix            | 2          | 20~269         | 145             | 7        | 13~284   | 146             | 9 146   |
| 5     | Farfarae Flos              | 0          | -              | -               | 0        | -        | -               | 0 -     |
| 6     | Clematis Radix             | 2          | 11~16          | 14              | 2        | 11~203   | 107             | 4 60    |
| 7     | Morinda Radix              | 1          | 20             | 20              | 0        | -        | -               | 1 20    |
| 8     | Glehniae Radix Cum Rhizoma | 3          | 790~1202       | 980             | 0        | -        | -               | 3 980   |
| 9     | Polygonati Rhizoma         | 3          | 106~463        | 259             | 2        | 11~159   | 85              | 5 189   |
| 10    | Chrysanthemi Indici Flos   | 2          | 18~3230        | 1624            | 4        | 600~3990 | 1568            | 6 158   |
| 11    | Thujae Orientalis Semen    | 1          | 14             | 14              | 2        | 11~19    | 15              | 3 15    |
| 12    | Persicae Semen             | 1          | 59             | 59              | 0        | -        | -               | 1 59    |
| 13    | Bletillae Tuber            | 2          | 444~2004       | 1224            | 3        | 31~576   | 238             | 5 633   |
| 14    | Saposhnikoviae Radix       | 1          | 35             | 35              | 1        | 304      | 304             | 2 170   |
| 15    | Zizyphi Spinosi Semen      | 0          | -              | -               | 0        | -        | -               | 0 -     |
| 16    | Nelumbinis Semen           | 2          | 2489~3377      | 2933            | 2        | 13~70    | 42              | 4 1487  |
| 17    | Arecae Semen               | 2          | 67~207         | 137             | 1        | 46       | 46              | 3 107   |
| 18    | Codonopsis Radix           | 5          | 11~3414        | 1854            | 8        | 183~729  | 442             | 13 985  |
| 19    | Pruni Japonicae Semen      | 4          | 13~636         | 323             | 7        | 28~374   | 106             | 11 185  |
| 20    | Lili Bulbus                | 5          | 17~3440        | 1081            | 8        | 146~1141 | 525             | 13 738  |
| 21    | Polyporus                  | 2          | 37~117         | 77              | 4        | 11~90    | 57              | 6 63    |
| 22    | Scrophulariae Radix        | 4          | 19~50          | 34              | 6        | 24~138   | 80              | 10 62   |
| 23    | Peucedani Radix            | 3          | 38~736         | 281             | 0        | -        | -               | 3 281   |
| 24    | Phlomidis Radix            | 3          | 52~863         | 498             | 6        | 12~969   | 395             | 9 429   |
| 25    | Amomi Rorundi Fructus      | 1          | 90             | 90              | 0        | -        | -               | 1 90    |
| 26    | Meliae Toosendan Fructus   | 2          | 14~21          | 18              | 0        | -        | -               | 2 18    |
| 27    | Kaempferiae Rhizoma        | 4          | 81~732         | 305             | 1        | 861      | 861             | 5 416   |
| 28    | Ganoderma                  | 1          | 1210           | 1210            | 0        | -        | -               | 1 1210  |
| 29    | Castanea crenata           | 0          | -              | -               | 0        | -        | -               | 0 -     |
| 30    | Strychni Ignatii Semen     | 0          | -              | -               | 0        | -        | -               | 0 -     |
| Total |                            | 0          | 11~3440        | 603             | 130      | 11~3990  | 340             | 515 460 |

<sup>a</sup>n : number of herbal medicines detected sulfur dioxide.

Table 5. Determination of SO<sub>2</sub> residual contents in herbal medicines collected at 13 sites by modified M.W. method

| Imported |                                    |            | Domestic |         |            |
|----------|------------------------------------|------------|----------|---------|------------|
| City     | n <sup>a</sup> /Total <sup>b</sup> | Mean (ppm) | City     | n/Total | Mean (ppm) |
| Tokyo    | 7/23                               | 184        | Chunju   | 12/28   | 350        |
| Osaka    | 12/26                              | 315        | Keumsan  | 10/29   | 279        |
| Chundu   | 14/28                              | 789        | Jecheun  | 9/29    | 434        |
| Xi'an    | 16/28                              | 1068       | Seoul    | 12/28   | 587        |
| Ankuo    | 20/28                              | 358        | Bongwha  | 11/26   | 315        |
|          |                                    |            | Kwangju  | 8/28    | 358        |
|          |                                    |            | Daegu    | 10/28   | 139        |
|          |                                    |            | Busan    | 11/28   | 233        |

<sup>a</sup>n : number of herbal medicines detected sulfur dioxide.

<sup>b</sup>Total : number of herbal medicines collected.

Table 6. Comparision of SO<sub>2</sub> residual contents in water wash from various herbal medicines

| Sample                   | City    | SO <sub>2</sub> contents (ppm) |      |     |     | Rate of decrease (%) |      |      |      |
|--------------------------|---------|--------------------------------|------|-----|-----|----------------------|------|------|------|
|                          |         | Raw                            | A    | B   | C   | Raw                  | A    | B    | C    |
| Codonopsis Radix         | Osaka   | 503                            | 467  | 404 | 345 | 0                    | 7.2  | 19.7 | 31.4 |
| Nelumbinis Semen         | Chundu  | 823                            | 742  | 543 | 460 | 0                    | 9.8  | 34.  | 44.1 |
| Lilii Bulbus             | Chundu  | 777                            | 698  | 644 | 537 | 0                    | 10.2 | 17.1 | 30.9 |
| Bletillae Tuber          | Xi'an   | 778                            | 698  | 603 | 511 | 0                    | 10.3 | 22.5 | 34.3 |
| Asparagi Radix           | Tokyo   | 480                            | 314  | 306 | 271 | 0                    | 34.6 | 36.3 | 43.5 |
| Phlomidis Radix          | Osaka   | 355                            | 311  | 233 | 193 | 0                    | 12.4 | 34.4 | 45.6 |
| Chrysanthemi Indici Flos | Xi'an   | 1154                           | 1005 | 895 | 872 | 0                    | 12.9 | 22.4 | 24.4 |
| Cimicifugae Rhizoma      | Chunju  | 417                            | 323  | 283 | 142 | 0                    | 22.5 | 32.1 | 65.9 |
| Kaempferiae Rhizoma      | Keumsan | 329                            | 274  | 239 | 103 | 0                    | 16.7 | 27.4 | 68.7 |
| Saposhnikoviae Radix     | Seoul   | 212                            | 195  | 163 | 134 | 0                    | 8.0  | 23.1 | 36.8 |

A : After washing once with distilled water

B : After washing twice with distilled water

C : After washing three times with distilled water

섭취하는데, 한약재를 달이는 과정 중 재료의 수세와 가열 이후의 이산화황 잔류량의 변화를 조사하여 실제 탕액의 음용전에 이산화황이 얼마나 감소하는지를 살펴보았다.

우선 수세에 따른 변화를 관찰하기 위해서 최초 구입한 검체 중 이산화황이 잔류량이 200~500 mg/kg인 한약재 5품목(당삼, 속단, 승마, 금산, 방풍)과 500~1,000 mg/kg인 한약재 5품목(연자육, 백합, 백급, 당삼, 감국)에 대하여 분석한 결과는 Table 6과 같다. 승마와 산내의 경우 수세후 이산화황 감소율이 60% 이상으로 나타났다. 3회 수세과정 거친 경우의 이산화황 감소율은 24.4%~68.7%로 나타났다. 또한, 한약재의 달이는 과정과 같이 가열에 따른 이산화황 잔류량 변화는 Table 7에 나타내었다. 승마(417 mg/kg)는 3회 수세후 달이는 경우 이산화황이 검출되지 않았으며, 감국의 경우에서도 95% 이상의 높은 감소율을 보였다. 3회 수세후 달이는 경우의 이산화황 감소율은 83.8%~100.0%로 나타났다. 수세에 따른 잔류량은 큰 변화를 보이지 않았지만, 탕액을 조제하기 위해서 가열에 의한 잔류량 변화는 크게 나타났다. 따라서, 수세 및 가열과정을 거쳐 실제 섭취하는 형태의 한약액에서는 이산화황의 함유량이 크게 감소함을 알 수 있었다.

#### 4. 결론

국내, 중국 및 일본에서 유통되고 있는 한약재를 대상으로 이산화황 함유량을 조사한 결과, 총 373종 중 221종에서는 불검출(59.8%)이었으며, 관동화, 산조인, 건율, 및 보두(4품목)에서는 수거지역에 관계 없이 불검출이었으나, 천문동, 당삼, 백합 및 산내(4 품목)의 경우 수거지역 모두에서 검출되었다. 중국

의 안국 지역이 28품목 중 20품목으로 가장 많이 검출되었고, 국내의 광주 지역이 28품목 중 8품목으로 가장 적게 검출되었다. 국내 재배중인 한약재 자체의 이산화황 함유량을 조사하기 위해서 수거한 16종은 모두 이산화황이 검출되지 않았다.

국내 유통 한약재의 경우 11~3,990 mg/kg(평균 340 mg/kg)이었으며, 국외 유통 한약재의 경우 11~3,440 mg/kg(평균 603 mg/kg)으로 나타나 국내 유통 한약재에 비해 약 2배 가량 높게 나타났으며, 전체 평균 460 mg/kg로 나타났다. 수세에 따른 경시 변화를 관찰한 결과, 3회 수세과정 거친 경우의 이산화황 감소율은 24.4%~68.7%로 나타났다. 또한, 가열에 따른 이산화황 잔류량 변화는 3회 수세후 달이는 경우의 이산화황 감소율은 83.8%~100.0%로 나타났다.

본 연구에서 이산화황 함유량은 11~3,990 mg/kg의 범위로 검출되었다. 수세 및 가열과정을 거쳐 실제 섭취하는 형태의 탕액에서는 원재료보다 이산화황의 잔류량이 크게 감소하였으나 완전히 제거되지는 않는 것으로 나타났다. 따라서, 안전한 한약재를 국민에게 공급하기 위해서는 이산화황 함유량에 대한 지속적인 모니터링 및 품질관리가 필요할 것으로 사료된다.

#### 참고문헌

- 1) Talor, S. L., N. A. Higley and R. K. Bush, 1986, Sulfite in foods, *Adv. Food Res.*, 30, 1-7.
- 2) Roberts, A. C. and D. J. Macweeny, 1972, The use of sulfir dioxide in the food industry, *J. Food Technol.*, 7, 221-226.
- 3) Su, Y. C. and S. L. Taylor, 1995, Sulphite analysis of food ingredients : false positive

- responses with butter flavourings in the optimized Monier-Williams method, *Food Add. Conta.*, 12, 153-160.
- 4) Korean Code of Food Ingredient, 2002, Korea Food & Drug Administration.
  - 5) U. S. A. Code of Federal Regulations 21, 4-1-98 ed., § 182.3862, Sulfur dioxide, 438.
  - 6) The Korean Herbal Pharmacopoeia, 2002, Korea Food & Drug Administration.
  - 7) Kim, H. Y., Y. J. Lee, K. H. Hong, Y. K. Kwon, H. S. Ko, Y. K. Lee and C. W. Lee, 2000, Studies on the Contents of Naturally Occurring of Sulfite in foods, *Korean J. Food Sci. Technol.*, 32(3), 544-549.
  - 8) Kim, H. J., Y. K. Kim and M. Smith, 1988, Sulfite analysis by ion exclusion chromatography : Application to the food and beverage industries, *Food Technol.*, Nov., 113-115pp.
  - 9) Holak, W. and B. Patel, 1987, Differential pulse polarographic determination of sulfites in foods, *J. Assoc. Off. anal. Chem.*, 70, 572-578.
  - 10) Lawrence, J. F. and R. K. Chadha, 1988, Determination of sulfite in foods by headspace liquid chromatography, *J. Assoc. Off. Anal. Chem.*, 71, 930-933.
  - 11) Perfetti, G. A., F. L. Joe and G. W. Diachenko, 1989, Liquid chromatographic determination of sulfite in grapes and selected grape products., *J. Assoc. Off. Anal. Chem.*, 72, 903-906.
  - 12) Holak, W. and J. Specchio, 1989, Determination of sulfites in foods by simultaneous nitrogen purging and differential pulse polarography, *J. Assoc. Off. Anal. Chem.*, 72, 476-480.
  - 13) Sullivan, J. J., T. A. Hollingworth, M. M. Wekell, R. T. Newton and J. E. Larose, 1986, Determination of sulfite in food by flow injection analysis, *J. Assoc. Off. Anal. Chem.*, 69, 542-546.
  - 14) Kim, C. M., B. J. Song and H. S. Na, 2000, Determination of sulfite contents in medicinal herbs, *Korean J. Food Sci. Technol.*, 29(3), 375-379.
  - 15) Korean Code of Food, 2002, Korea Food & Drug Administration.
  - 16) Official Methods of Analysis of AOAC International, 17th ed., 2000, Assoc. Offic. Anal. Chem., Ch47, 29-30.