

전탕 전과 후의 중금속, 잔류농약 및 잔류이산화황의 농도변화 - 소화기계 약을 중심으로 -

서창섭¹, 황대선¹, 이준경¹, 하혜경¹, 천진미², 엄영란³, 장설³, 신현규^{1*}

1: 한국한의학연구원 한약EBM연구센터 2: 한국한의학연구원 한약자원연구센터
3: 한국한의학연구원 한약품질관리센터

Concentration of Heavy Metals, Residual Pesticides and Sulfur Dioxide of before/after a Decoction - In Prescription of Digestive System -

Chang-Seob Seo¹, Dae-Sun Huang¹, Jun-Kyoung Lee¹, Hye-Kyoung Ha¹, Jin-Mi Chun²,
Young-Ran Um³, Seol Jang³, Hyun-Kyoo Shin^{1*}

1: Center of Herbal EBM Research, Korea Institute of Oriental Medicine
2: Center of Herbal Resources Research, Korea Institute of Oriental Medicine
3: Center of Herbal Quality Control, Korea Institute of Oriental Medicine

ABSTRACT

Objectives : To compare the contents of hazardous substances before/after a decoction.

Methods : The heavy metal contents before/after a decoction were measured by Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometer (ICP-AES) and mercury analyzer. In order to analyze pesticides in 6 samples we used simultaneous multi-residue analysis of pesticides by GC/ECD, which was followed by GC/MSD analysis to confirm the identity of the detected pesticide in each sample. In addition, the contents of sulfur dioxide (SO₂) were performed by Monier-Williams distillation method.

Results : 1. The mean values of heavy metal contents (mg/kg) for the samples were as follows: *Samchulkunbi-tang* (before decoction - Pb; 1.592, Cd; 0.155, As; 0.055 and Hg; 0.014, after decoction - Pb; 0.036, Cd; 0.002, As; not detected and Hg; 0.001), *Yijin-tang* (before decoction - Pb; 0.830, Cd; 0.077, As; 0.045 and Hg; 0.015, after decoction - Pb; 0.193, Cd; 0.010, As; not detected and Hg; 0.002), *Banhabaikchulcheunma-tang* (before decoction - Pb; 0.976, Cd; 0.164, As; 0.167 and Hg; 0.019, after decoction - Pb; 0.031, Cd; 0.003, As; 0.006 and Hg; 0.005), *Pyungwi-san* (before decoction - Pb; 2.162, Cd; 0.128, As; 0.061 and Hg; 0.018, after decoction - Pb; 0.080, Cd; 0.006, As; not detected and Hg; 0.005), *Leejung-tang* (before decoction - Pb; 1.480, Cd; 0.294, As; 0.034 and Hg; 0.012, after decoction - Pb; 0.064, Cd; 0.007, As; 0.007 and Hg; 0.002) and *Kwibi-tang* (before decoction - Pb; 0.907, Cd; 0.193, As; 0.085 and Hg; 0.020, after decoction - Pb; 0.072, Cd; 0.006, As; 0.004 and Hg; 0.002).

* 교신저자 : 신현규, 대전시 유성구 엑스포로 483 한국한의학연구원 한약EBM연구센터
· Tel : 042-868-9464 · E-mail : hkshin@kiom.re.kr
· 접수 : 2009년 2월 16일 · 수정 : 2009년 3월 20일 · 채택 : 2009년 3월 20일

2. Contents (mg/kg) of sulfur dioxide (SO₂) before a decoction in *Banhabaikchulcheunma-tang*, *Pyungwi-san*, *Leejung-tang* and *Kwibi-tang* exhibited 3.5, 3.4, 3.8 and 12.4, respectively. However, contents of sulfur dioxide after a decoction in all samples were not detected.
3. Contents (mg/kg) of residual pesticides before/after a decoction in all samples were not detected.

Conclusions : These results will be used to establish a criterion of heavy metals, residual pesticides and sulfur dioxide.

Key words : Herbal medicine, heavy metal, pesticide, sulfur dioxide

서론

한의학계는 국민들이 복용하는 한약재에 유해물질(중금속, 잔류농약)이 포함되어 있다는 언론의 보도에 따른 국내 한의학계 의료시장의 위축에 우려를 가지고 있다.

산업화 및 공업화로 인해 배출되는 각종 오염물질 중에서 As, Pb, Cd 및 Hg 등과 같은 중금속 물질은 토양에서 이동성이 낮고 축적성이 높기 때문에 토양을 오염시킨다^{1,2)}. 이러한 중금속은 한약재의 중금속 오염에 따른 인체 기능의 장애를 일으키는 Hg, Cd, Cr 및 Pb 등과 같은 유독금속과³⁾ 유전자에 영향을 미치는 Cd, Mn 및 Cr 등과 같은 유전독성 금속으로 나뉜다^{4,5)}. 국제적으로 설정된 중금속의 섭취허용량은 Cd, Hg, Pb 및 As의 경우 각각 55.4-71.1, 43, 3,000-30,000 및 120,000 µg/60 kg person/day이다⁶⁾. 국내 한약에 대한 중금속 허용기준의 경우 식물성 생약에 대해서는 As, Pb, Cd 및 Hg에 대한 개별 허용기준이 설정되어 있으나, 생약의 추출물과 생약만을 주성분으로 하는 제제는 총 중금속 30 mg/kg 이하로만 설정되어 있는 실정이다⁷⁾. 또한 현재 유통되는 한약재 중에 농약에 대한 관심이 고조되고 있고, 농약은 약용 식물 재배시 해충 등의 제거목적으로 살포되어 한약재에 잔류 가능성이 많다. 실제 제2차 세계대전 이후 BHC, DDT, parathion 등의 살충제 사용으로 인체 건강에 대한 피해사례, 중독사고 및 환경 내 잔류성 등과 같은 피해가 보고되었다⁸⁻¹²⁾. 우리나라에서는 BHC (α, β, γ 및 δ-BHC), DDT (ρ,ρ'-DDD, ρ,ρ'-DDE, o,ρ'-DDT 및 ρ,ρ'-DDT), aldrin, endrin 및 dieldrin만이 설정되어 있어¹³⁾, 한약재 중에 잔류농약에 대한 연구는 극히 미비한 상태이다. 이전에는 우리나라에서 유통되는 한약재 및 중국에서 수입되는 약재에서 유통 혼증이 많이 이루어졌으며, 또한 한약재의 갈변이나 충해 방지 등의 목적으로 이산화황으로 처리하여 이산화황이 잔류되고 있다. 현재 우리나라의 경우 한약

의 이산화황 잔류기준은 단계별로 설정되어 있던 기준을 30 mg/kg 이하로 조정하여 시행될 예정이다¹⁴⁾. 이산화황 함유량에 대한 연구는 천연유래 이산화황 함유량에 대한보고¹⁵⁻¹⁷⁾, 이산화황 함유량 최적 분석방법을 설정하기 위하여 모니터-윌리암스변법, 개량랭킹법, 이온크로마토그래피법 등을 비교한 것 등이 보고되고 있다^{15,18-21)}.

이에 본 실험에서는 본 학회지 23권 4호에 발표한 감기약 처방²²⁾에 이어 한의원에서 소화기계 환자에게 처방하는 한약 처방 중 빈도가 높은 6가지 처방인 參朮健脾湯, 二陳湯, 半夏白朮天麻湯, 平胃散, 理中湯 및 歸脾湯에 대하여 전탕 전과 후의 As, Pb, Cd 및 Hg의 함유량과 잔류농약 및 잔류이산화황의 함유량을 조사하였다. 이들 조사를 토대로 6종의 처방에 대한 안전성을 확립하고 중금속, 잔류이산화황 및 잔류농약의 함량 허용기준을 설정하는 데 기초 자료로 활용하고자 한다.

재료 및 방법

1. 재료

본 실험에 사용된 參朮健脾湯, 二陳湯, 半夏白朮天麻湯, 平胃散, 理中湯 및 歸脾湯의 구성처방인 인삼 (Ginseng Radix), 백출 (Atractylodis Rhizoma), 복령 (Poria Sclerotium), 진피 (Citri Unshius Pericarpium), 산사육 (Crataegi Fructus), 작약 (Paeoniae Radix), 신곡 (Massa Medicata Fermentata), 맥아 (Hordei Fructus Germinatus), 생강 (Zingiberis Rhizoma), 대추 (Zizyphi Fructus), 반하 (Pinelliae Tuber), 천마 (Gastrodiae Rhizoma), 황기 (Astragali Radix), 택사 (Alimatis Rhizoma), 건강 (Zingiberis Rhizoma) 및 당귀 (Angelicae Gigantis Radix)는 (주)옴니허브

Table 1. Combinations of Crude Drugs in Herbal Medicine

Crude drugs	Compounded crude drugs (g)					
	<i>Samchulk unbi-tang</i>	<i>Yijin-tang</i>	<i>Banhabaikchulc heunma-tang</i>	<i>Pyungwi -san</i>	<i>Leejung -tang</i>	<i>Kwibi -tang</i>
인삼Ginseng Radix	3.75		1.875		7.5	3.75
백출Atractylodis Rhizoma	3.75		3.75		7.5	3.75
복령Poria Sclerotium	3.75	3.75	1.875			
후박Magnoliae Cortex	3.75			3.75		
진피Citri Unshius Pericarpium	3.75	3.75	5.625	5.25		
산사육Crataegi Fructus	3.75					
지실Ponciri Fructus	3.00					
작약Paeoniae Radix	3.00					
축사Amomi Semen	1.875					
신곡Massa Medicata Fermentata	1.875		3.75			
맥아Hordei Fructus Germinatus	1.875		5.625			
감초Glycyrrhizae Radix	1.875	1.875		2.25	3.75	1.125
생강Zingiberis Rhizoma	3.75	3.75	6.25	3.75		6.25
대추Zizyphi Fructus	3.75			3.75		3.75
반하Pinelliae Tuber		7.5	5.625			
천마Gastrodiae Rhizoma			1.875			
창출Atractylodis Rhizoma			1.875	7.5		
황기Astragali Radix			1.875			3.75
택사Alimatis Rhizoma			1.875			
건강Zingiberis Rhizoma			1.125		7.5	
황백Phellodendri cortex			0.75			
당귀Angelicae Gigantis Radix						3.75
용안육Longanae Arillus						3.75
산조인Zizyphi Spinosi Semen						3.75
원지Polygalae Radix						3.75
복신Poria cocos						3.75
목향Saussureae Radix						1.875

(Yeongcheon, Korea)에서 구입하였으며, 후박(Magnoliae Cortex), 지실(Ponciri Fructus), 축사(Amomi Semen), 감초(Glycyrrhizae Radix), 창출(Atractylodis Rhizoma), 황백(Phellodendri cortex), 용안육(Longanae Arillus), 산조인(Zizyphi Spinosi Semen), 원지(Polygalae Radix), 복신(Poria cocos) 및 목향(Saussureae Radix)은 (주) HMAX (Chungbuk, Korea)에서 각각 구입하였다. 이들 각각의 처방은 Table 1과 같으며, 실험에 사용하기 위해 미세분말로 만든 다음 약전표준체(standard sieve No. 30, 600 µm)를 통과한 균질한 재료를 사용하였다.

2. 시약 및 기기

본 실험에 사용한 시약은 중금속 분석시 유해중금속 측정에 적합한 등급으로 불순물로 분석대상 물질을 포함하지 않는 질산(HNO₃)을 사용하였고, 납, 카

드뮘, 비소, 수은 분석에 사용한 표준원액은 (주) Anapex사(Daejeon, Korea)의 표준용액을 사용하였다. 잔류이산화황 시험에 사용한 염산(HCl)은 JT Baker 사(USA), 에탄올(Ethyl Alcohol)과 과산화수소(H₂O₂)는 Daejung Chemicals & Metals Co, Ltd. (Korea)에서 각각 구입하여 사용하였다. 그 외 모든 시약은 분석용 특급 시약을 사용하였다.

납, 카드뮴, 비소 분석은 ICP Atomic Emission Spectrometer (Thermo Jarrell Co, USA)를 사용하였고, 수은 분석은 Mercury Analyzer (SP-3D, Nippon Instrument Co, Japan)를 사용하였다. 잔류이산화황 시험시 적정은 Titrator (Metrohm 798 MPT, Metrohm Co, Switzerland)를 사용하였고, 잔류농약 분석은 GC 17A system (Shimadzu, Japan)과 GCMS-2010 system (Shimadzu, Japan)을 사용하였다. Microwave digestion system은 Ethos 1600 (Milestone Co, Italy)을 사용하였다. 추출기는 초고속진공저온추출기는 KyungSeo

Machine Co.의 Cosmos 660 (Inchon, Korea)을 사용하였으며, 동결건조기는 (주)일신랩의 PVTFD 100R (Yangju, Korea)을 사용하였다.

3. 시료전처리 및 실험방법

1) 중금속 측정

(1) 전탕 전

모든 초자 기구는 20% HNO₃ solution에 투척시킨 후 3차 증류수로 세척한 다음 건조시킨 것을 사용하였다. 건조한 전탕 전의 6가지 처방(Table 1)에 대하여 각각 0.5 g을 정확하게 달아 극초단파 시료전처리 장치 전용용기에 넣고 질산 5 mL를 넣었다. 용기를 후드 안에 정치시켜 발생 가스를 제거하고 극초단파 시료전처리장치(Microwave digestion system, Ethos 1600, Milestone Co, Italy, Table 2)를 사용하여 분해하였다. 분해가 끝난 다음 분해액을 여과지로 여과하여 10 mL 용량 플라스크에 표정하여 검액으로 하였다. 질산 5 mL를 검액 조제와 같은 방법으로 조작하여 공시험액으로 하였다.

Table 2. Operation Condition of Microwave Program

Step	Time (min)	Power (watt)
1	2	250
2	2	0
3	6	250
4	5	400
5	5	600
6	5	0 (Vent)

(2) 전탕 후

6가지 처방(Table 1)에 대하여 각각의 무게를 재서 약탕기에 넣고, 물을 시료의 10배로 첨가하여 100°C에서 120분간 전탕한 후 농축 및 동결건조 하였다. 이 시료들을 각각 약 10 g씩 정확하게 달아 전탕 전과 같은 방법으로 처리하여 20 mL 용량플라스크에 표정하여 검액으로 하였으며, 질산 5 mL를 검액 조제와 같은 방법으로 조작하여 공시험 액으로 하였다.

(3) 기기 분석조건

Table 2, 3과 같은 방법으로 중금속을 분석하였다.

(4) Pb, Cd, As 및 Hg 분석

Pb, Cd의 표준용액(1000 mg/L)은 0.5 mol/L 질산

을 사용하여 Pb는 BL, 100, 200, 500 ppb, Cd는 BL, 50, 100, 200 ppb를 조제한 후 검량선을 작성하였으며, As의 표준용액 (1000 mg/L)은 0.5 mol/L 질산을 사용하여 BL, 50, 100 ppb를 조제한 후 검량선을 작성하고 공시험액으로 보정하여 유도결합플라즈마분광계(ICP, Inductively Coupled Plasma Spectrometer, Table 3)를 사용하여 검액의 흡광도를 측정하였다.

Table 3. Operation Condition of ICP Analysis

Instruments	Operation conditions
Plasma	1350 W
Coolant gas flow	14 L/min
Nebulizer pressure	24.03 psi
pump rate	80 rpm (1.48 mL/min)
Wavelength(nm)	As (189.042), Cd (228.802), Pb (220.353)

Hg의 표준용액은 BL, 3, 6, 9 ppb를 조제한 후 검량선을 작성한 다음, 분석용 검체 약 100 mg을 정확하게 달아 수은분석기(SP-3D)를 이용하여 분석하였다.

2) 잔류이산화황

잔류이산화황 함유량은 모니어-윌리엄스변법²³⁾에 따라 정량하였다. 모니어-윌리엄스 증류장치(Fig. 1)를 이용하여 증류플라스크(C)에 물 400 ml를 넣고 분액깔때기(B) 코크를 잠그고 4M 염산 90 ml를 넣는다. 냉각기(E)에 냉수를 통과시키고, 가스주입관(D)을 통하여 질소가스를 0.21 l/min 속도로 통과시킨다. 이때 수기(G)에는 3% 과산화수소액 30 ml를 넣는다. 15분 후 분액깔때기(B)를 떼고 검체 약 50 g을 정밀하게 달아 가루로 하고 5% 에탄올액 100 ml를 넣어 흔들어서 섞고 플라스크(C)에 넣은 다음 분액깔때기(B)를 부착한 후 코크를 열어 수 ml가 남을 때까지 플라스크(C)에 주입한다. 1시간 45분 동안 가열한 후, 수기(G)를 떼고 가스유도관(F) 끝을 소량의 3% 과산화수소용액으로 씻어 수기에 넣고 마이크로뷰렛을 써서 0.01 M 수산화나트륨용액으로 20초간 지속하는 황색이 될 때까지 적정하여 아래의 공식에 따라 이산화황의 양을 산출하였다.

$$0.01 \text{ M 수산화나트륨액 } 1 \text{ mL} = 320 \mu\text{g SO}_2$$

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

V : 0.01 M 수산화나트륨용액의 소비량 (mL)

f : 0.01 M 수산화나트륨용액의 역가

S : 검체의 취한 양 (g)

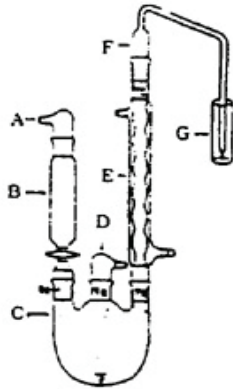


Fig. 1. Modified Monier-Williams distillation apparatus

3) 잔류농약 측정

(1) 전탕 전의 추출 및 정제

건조한 전탕 전의 6가지 처방(Table 1)에 대하여 각각 약 5 g을 정확하게 달아 물 40 mL를 넣고 방치한다. 여기에 아세톤 90 mL를 넣고 균질기(homogenizer)로 5분간 균질화한 후 진공펌프와 가지 달린 삼각플라스크 및 부크너깔때기로 감압여과 한다. 이 여액을 500 mL 분액깔때기에 옮기고 포화 식염수 50 mL와 증류수 100 mL를 가한다. 이에 디클로로메탄 70 mL를 넣고 흔들어 섞은 다음 정치하여 층을 분리시킨다. 아래층(디클로로메탄층)은 다른 분액깔때기에 모은다. 물층에 다시 디클로로메탄 70 mL를 넣고 흔들어 섞은 후 정치하여 층을 분리시킨 다음 아래층을 모은다. 디클로로메탄층은 무수황산나트륨을 통과시켜 탈수하고 감압농축기에 넣어 농축한 다음 헥산 4 mL에 녹인다. 그 후 미리 후로리실 카트리지(6 mL, 1 g)에 헥산 6 mL를 넣고 2분간 멈춘 다음 유출시켜 버리고, 이 카트리지에 20% 아세톤 함유 헥산 6 mL를 위와 같은 방법으로 유출하여 버린다. 이어서 추출액을 카트리지 상단에 넣고 2분간 컬럼에 머무르게 한 다음 서서히 유출액을 받는다. 카트리지가 용매에 젖어 있는 상태에서 헥산·디클로로메탄·아세톤(50 : 48.5 : 1.5) 용액 5 mL로 유출하여 유출액을 모은다. 유출액은 수욕상(40°C 이하)에서 감압농축시켜 용매를 날려 보낸 다음 20% 아세톤 함유 헥산 2 mL에 녹여 시험용액으로 하였다.

(2) 전탕 후의 추출 및 정제

6가지 처방(Table 1)에 대하여 각각의 무게를 재서 약탕기에 넣고, 물을 시료의 10배로 첨가하여 100°C에

서 120분간 전탕한 후 농축 및 동결건조 하였다. 이 시료들을 각각 5 g씩 정확하게 달아 전탕 전과 같은 방법으로 추출 및 정제를 실시하였다.

(3) 기기 분석조건

표준용액 및 시험용액을 GC/ECD에 각각 주입하고 얻어진 크로마토그램상의 각 피크를 표준용액의 피크와 비교하였고, GC/MSD 분석을 통해 머무름시간 및 질량스펙트럼으로 각 농약의 성분을 확인하였다 (Table 4, 5).

Table 4. Operation Condition of GC/ECD Analysis

Instruments	Operation conditions
GC-ECD	GC 17A system (Shimadzu)
Column	DB-17 fused-silica capillary (0.25 mm × 30 m)
Carrier gas	N ₂
Injector Temp.	260°C
Detector Temp.	280°C
Column Temp.	120°C (4 min) - 8°C/min - 260°C (5 min)
Split ratio	10 : 1

Table 5. Operation Condition of GC/MSD Analysis

Instrument	Operation conditions
GC-MS	GCMS-QP5050A system (Shimadzu)
Column	Rtx-5 fused-silica capillary (0.32 mm × 30 m)
Carrier gas	He
Linear velocity	44.4 cm s ⁻¹
Interface Temp.	280°C
Injector Temp.	260°C
Oven Temp.	100°C (2 min) - 10°C/min - 280°C (15 min)
Ionization mode	Electron impact 70 eV
Scan range	m/z 100 - 400
Split ratio	10 : 1

결과 및 고찰

1. 중금속 함량

1) 중금속 표준액의 검량선 작성

6가지 소화기계 처방의 중금속의 함량을 분석하기 위하여 Pb, Cd, As 및 Hg의 표준용액을 이용한 검량선 작성 결과 Pb는 $y = 28.71x + 4960.83$ ($R^2 = 1.00$), Cd는 $y = 242.36x + 4632.52$ ($R^2 = 1.00$), As는 $y = 532.71x + 4744.62$ ($R^2 = 1.00$) 및 Hg는 $y = 0.04x$

+ 0.00 ($R^2 = 1.00$)과 같이 본 학회지 23권 4호에 발표한 감기약 처방²²⁾을 중심으로 연구한 결과에서와 같이 양호한 직선성을 나타내었다.

2) 전탕 전과 후의 중금속 함량

參朮健脾湯, 二陳湯, 半夏白朮天麻湯, 平胃散, 理中湯 및 歸脾湯에 대한 전탕 전과 후의 중금속(Pb, Cd, As 및 Hg)은 Table 6과 같다. 參朮健脾湯의 경우 전탕 전의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량은 각각 1.592, 0.155, 0.055 및 0.014 mg/kg으로 검출된 반면에 전탕 후의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량은 0.036, not detected, 0.002, 및 0.001 mg/kg으로 검출되어 Pb는 전탕 전에 비해 97.7%, Cd는 98.7%, As는 100.0% 및 Hg는 92.9%가 각각 감소되었다. 二陳湯은 전탕 전의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량이 각각 0.830, 0.077, 0.045 및 0.015 mg/kg으로 검출된 반면에 전탕 후의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량은 0.193, 0.010, not detected 및 0.002 mg/kg 검출되어 Pb는 전탕 전에 비해 76.7%, Cd는 87.0%, As는 100.0% 및 Hg는 86.7%가 각각 감소되었다. 半夏白朮天麻湯은 전탕 전의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량이 각각 0.976, 0.164, 0.167 및 0.019 mg/kg으로 검출된 반면에 전탕 후의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량은 0.031, 0.003, 0.006 및 0.005 mg/kg로 검출되어 Pb는 전탕 전에 비해 96.8%, Cd는 98.2%, As는 96.4% 및 Hg는 73.7%가 각각 감소되었다. 平胃散은 전탕 전의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량이 각각 2.162, 0.128, 0.061 및 0.018 mg/kg으로 검출된 반면에 전탕 후의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량은 0.080,

0.006, not detected 및 0.005 mg/kg 검출되어 Pb는 전탕 전에 비해 96.3%, Cd는 95.3%, As는 100.0% 및 Hg는 72.2%가 각각 감소되었다. 理中湯의 경우 전탕 전의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량이 각각 1.480, 0.294, 0.034 및 0.012 mg/kg으로 검출된 반면에 전탕 후의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량은 0.064, 0.007, 0.007 및 0.002 mg/kg 검출되어 Pb는 전탕 전에 비해 95.7%, Cd는 97.6%, As는 79.4% 및 Hg는 83.3%가 각각 감소되었다. 또한 歸脾湯은 전탕 전의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량이 각각 0.907, 0.193, 0.085 및 0.020 mg/kg으로 검출된 반면에 전탕 후의 Pb, Cd, As 및 Hg의 함량은 0.072, 0.006, 0.004 및 0.002 mg/kg 검출되어 Pb는 전탕 전에 비해 92.1%, Cd는 96.9%, As는 95.3% 및 Hg는 90.0%가 각각 감소되었다. 이는 모두 식약청 기준인 30 mg/kg보다 낮게 검출되었음을 알 수 있었다.

2. 전탕 전과 후의 이산화황 함량

국내에서 소화기계 처방 사용빈도가 높은 6가지 처방을 대상으로 한 이산화황 잔류량을 측정된 결과 Table 6과 같았다. 6가지 처방인 參朮健脾湯, 二陳湯, 半夏白朮天麻湯, 平胃散, 理中湯 및 歸脾湯에 대한 이산화황 측정결과는 半夏白朮天麻湯, 平胃散, 理中湯 및 歸脾湯이 전탕 전에 3.5, 3.4, 3.8 및 12.4 mg/kg으로 각각 검출되었으나 전탕 후에는 6가지 처방 모두 이산화황이 검출되지 않았다.

Table 6. Result of Pb, Cd, As, Hg Analysis and SO₂ Residual Contents

Materials		Heavy metals (mg/kg)				SO ₂ residual (mg/kg)
		Pb	Cd	As	Hg	
參朮健脾湯 (<i>Samchulkunbi-tang</i>)	Before decoction	1.592	0.155	0.055	0.014	N.D.*
	After decoction	0.036	0.002	N.D.	0.001	N.D.
二陳湯 (<i>Yijin-tang</i>)	Before decoction	0.830	0.077	0.045	0.015	N.D.
	After decoction	0.193	0.010	N.D.	0.002	N.D.
半夏白朮天麻湯 (<i>Banhabaikchulcheunma-tang</i>)	Before decoction	0.976	0.164	0.167	0.019	3.5
	After decoction	0.031	0.003	0.006	0.005	N.D.
平胃散 (<i>Pyungwi-san</i>)	Before decoction	2.162	0.128	0.061	0.018	3.4
	After decoction	0.080	.006	N.D.	0.005	N.D.
理中湯 (<i>Leejung-tang</i>)	Before decoction	1.480	0.294	0.034	0.012	3.8
	After decoction	0.064	0.007	0.007	0.002	N.D.
歸脾湯 (<i>Kwibi-tang</i>)	Before decoction	0.907	0.193	0.085	0.020	12.4
	After decoction	0.072	0.006	0.004	0.002	N.D.

* : Not Detected

3. 전탕 전과 후의 잔류농약 함량

GC/ECD와 GC/MSD를 이용하여 BHC (α , β , γ 및 δ -BHC), DDT (p,p' -DDD, p,p' -DDE, 2,4-DDT 및 4,4-DDT), aldrin, endrin 및 dieldrin 등과 같은 잔류농약의 함량을 조사하였다. 이들의 허용기준치는 BHC (α , β , γ 및 δ -BHC)가 0.2 mg/kg, DDT (p,p' -DDD, p,p' -DDE, 2,4-DDT 및 4,4-DDT)가 0.1 mg/kg, aldrin이 0.01 mg/kg, endrin이 0.01 mg/kg 및 dieldrin이 0.01 mg/kg으로 고시되어 있다(Table 7). 이들 잔류농약에 대한 머무름시간은 α -BHC (14.828 min), γ -BHC (15.798 min), β -BHC (15.972 min), δ -

BHC (16.869 min), aldrin (17.310 min), p,p' -DDE (19.850 min), dieldrin (20.089 min), endrin (20.794 min), p,p' -DDD (21.015 min), 2,4-DDT (21.051 min) 및 4,4-DDT (21.621 min)의 순으로 나타났다(Table 7). 이에 국내에서 소화기계 처방시 처방 빈도가 높은 6가지 처방, 參朮健脾湯, 二陳湯, 半夏白朮天麻湯, 平胃散, 理中湯 및 歸脾湯에 대하여 잔류농약 함량을 조사한 결과 Table 8에서와 같이 전탕 전과 후 모두 잔류농약이 검출되지 않음을 알 수 있었다.

이상의 결과를 종합하여 볼 때 6가지 소화기계 처방을 이용하여 전탕 전과 후의 중금속, 잔류이산화황 및 잔류농약의 함량을 조사한 결과 잔류농약과 잔류

Table 7. Retention Time of Standards and Allowable Standard

Pesticide	Std. R.T. (min)	Allowable standard (mg/kg)	Pesticide	Std. R.T. (min)	Allowable standard (mg/kg)
	GC/ECD			GC/ECD	
α -BHC	14.828	0.2	p,p' -DDE	19.850	0.1
β -BHC	15.972		p,p' -DDD	21.015	
γ -BHC	15.798		2,4-DDT	21.051	
δ -BHC	16.869		4,4-DDT	21.621	
Aldrin	17.310	0.01	Dieldrin	20.089	0.01
Endrin	20.794	0.01			

Table 8. Result of Residual Pesticides Analysis

Materials		Pesticides (mg/kg)										
		α -BHC	β -BHC	γ -BHC	δ -BHC	2,4-DDT	4,4-DDT	p,p' -DDE	p,p' -DDD	Aldrin	Dieldrin	Endrin
參朮健脾湯 (<i>Samchulkunbi-tang</i>)	Before decoction	N.D.*	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	After decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
二陳湯 (<i>Yijin-tang</i>)	Before decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	After decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
半夏白朮天麻湯 (<i>Banhabaikchulcheunma-tang</i>)	Before decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	After decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
平胃散 (<i>Pyungwi-san</i>)	Before decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	After decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
理中湯 (<i>Leejung-tang</i>)	Before decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	After decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
歸脾湯 (<i>Kwibi-tang</i>)	Before decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	After decoction	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

* : Not Detected

이산화황은 전탕 전과 후 모두 검출되지 않았고, 중금속 경우 전탕 후의 함량이 식약청 기준보다 낮게 검출되었다. 이러한 중금속 함량이 줄어든 결과는 대부분의 한약이 그대로 복용하기 보다는 대부분 물로 끓여서 그 침출액만 복용하고 잔사나 침전물은 복용하지 않으므로 불용성 또는 난용성의 무기염들이 용출되지 않고 그대로 제거되기 때문이라고 사료된다. 그러나 보다 객관적인 안전성을 확립하고 중금속, 잔류이산화황 및 잔류농약의 함량 허용기준을 설정하는데 기초 자료로 활용하기 위해서는 세척수나 탕제 후 남은 찌꺼기 등에 대한 연구가 병행되어야 할 것으로 사료된다.

결론

본 연구는 한방의료기관에서 한약을 복용하는 환자들에게 전탕된 한약의 안전성을 확보하여, 안심하고 복용할 수 있는지를 알아보기 위해 소화기계 처방을 중심으로 처방 빈도가 비교적 높은 6가지 처방(參朮健脾湯, 二陳湯, 半夏白朮天麻湯, 平胃散, 理中湯 및 歸脾湯)을 대상으로 각각 전탕 전과 후의 중금속, 잔류이산화황 및 잔류농약 함량을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 소화기계 처방을 중심으로 처방빈도가 높은 6가지 처방에 대하여 처방의 전탕 전과 후의 중금속 함량을 측정된 결과 전탕 전에 비해 전탕 후의 중금속 함량은 參朮健脾湯은 Pb는 97.7%, Cd는 98.7%, As는 100.0% 및 Hg는 92.9%가 각각 감소되었으며, 二陳湯은 Pb는 76.7%, Cd는 87.0%, As는 100.0% 및 Hg는 86.7%가 각각 감소되었다. 半夏白朮天麻湯은 전탕 전에 비해 Pb는 96.8%, Cd는 98.2%, As는 96.4% 및 Hg는 73.7%가 각각 감소되었으며, 平胃散은 Pb는 96.3%, Cd는 95.3%, As는 100.0% 및 Hg는 72.2%가 각각 감소되었다. 또한 理中湯은 전탕 전에 비해 Pb는 95.7%, Cd는 97.6%, As는 79.4% 및 Hg는 83.3%가 각각 감소되었으며, 歸脾湯은 Pb는 92.1%, Cd는 96.9%, As는 95.3% 및 Hg는 90.0%가 각각 감소되었다.
2. 처방의 전탕 전과 후의 이산화황 잔류량을 측정된 결과 半夏白朮天麻湯, 平胃散, 理中湯 및 歸脾湯이 전탕 전에 3.5, 3.4, 3.8 및 12.4 mg/kg으로 각각 검출되었으나 전탕 후에는 6가지 처방 모두 이산화

황이 검출되지 않았다.

3. 처방의 전탕 전과 후의 잔류농약 함량 측정 결과 모든 처방에서 검출되지 않았다.

감사의 글

본 연구는 한국한의학연구원에서 지원하는 '표준한방처방 EBM 구축사업'에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. Massaro EJ. Handbook of human toxicology. New York : Boca Raton Press. 1990 : 149-88.
2. Rhee JS. A study on the content of heavy metal in domestic or foreign oriental medicine by means of quantitative analytical method. Seoul, Korea : MS. Thesis, Dept. of Oriental Medicine, Kyung Hee University. 1995.
3. WHO. Lead (Environmental Health Criteria 3). WHO. 1997 : 44-54.
4. Conor Reilly. Metal contamination of food. London : Applied Science Publisher LTD. 1980 : 119-22.
5. Conor Reilly. Metal contamination of food. 2nd edition. London : Elsevier Science Publishers LTD. 1991 : 95-8.
6. Codex Alimentarius Commission, Contaminants. Joint FAO/WHO food standards program. Vol XVII, Rome. Codex Alimentarius. 1984 : 1-33.
7. KFDA. A notice from 2008-2, Korea Food and Drug Administration. Seoul, Korea. 2008.
8. 박성수. GC/MS를 이용한 요의 유해화학물질 및 유기인계화합물의 대사물에 관한 연구. 건국대학교 대학원 박사학위논문. 1998.
9. Rogan WJ, Gladen BC, McKinney JD, Carreras N, Hardy P, Thullen J, Tingelstad J, Tully M. Polychlorinated biphenyls (PCBs) and dichlorodiphenyl dichloroethene (DDE) in human milk: effects of maternal factors and previous lactation. Am J Public Health. 1986 ; 76 : 172-7.
10. Schecter A, Li L. Dioxins, dibenzofurans, dioxin-

- like PCBs, and DDE in US Fast Food. *Chemosphere*. 1995 ; 34 : 1449-57.
11. Stevens MF, Ebell GF, Psaila-Savona P. Organochlorine pesticides in Western Australian nursing mothers. *Med J Aust*. 1993 ; 158 : 238-41.
 12. Kutz FW, Wood PH, Bottimore DP. Organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyls in human adipose tissue. *Rev Environ Contam Toxicol*. 1991 ; 120 : 1-82.
 13. KFDA. A notice from 2008-23, Korea Food and Drug Administration, Seoul, Korea. 2008.
 14. KFDA. A notice from 2008-3, Korea Food and Drug Administration, Seoul, Korea. 2008.
 15. 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*. 2000 ; 32 : 544-9.
 16. Kim HJ, Kim YK, Smith M. Sulfite analysis by ion exclusion chromatography: Application to the food and beverage industries. *Food Technol*. 1988 ; 11 : 113-5.
 17. Holak W, Patel B. Differential pulse polarographic determination of sulfites in foods. *J Assoc Off Anal Chem*. 1987 ; 70 : 572-8.
 18. Lawrence JF, Chadha RK. Determination of sulfite in foods by headspace liquid chromatography. *J Assoc Off Anal Chem*. 1988 ; 71 : 930-3.
 19. Perfetti GA, Joe FL, Diachenko GW. Liquid chromatographic determination of sulfite in grapes and selected grape products. *J Assoc Off Anal Chem*. 1989 ; 72 : 903-6.
 20. Holak W, Specchio J. Determination of sulfites in foods by simultaneous nitrogen purging and differential pulse polarography. *J Assoc Off Anal Chem*. 1989 ; 72 : 476-80.
 21. Sullivan JJ, Hollingworth TA, Wekell MM, Newton RT, Larose JE. Determination of sulfite in food by flow injection analysis. *J Assoc Off Anal Chem*. 1986 ; 69 : 542-6.
 22. Seo CS, Huang DS, Lee JK, Ha HK, Chun JM, Um YR, Jang S, Shin HK. Concentration of heavy metals, residual pesticides and sulfur dioxide of before/after a decoction. *Kor J Herbology*. 2008 ; 23 : 51-8.
 23. Korean Code of Food. Korea Food & Drug Administration. 2005.