

## 대구지역 유통 한약재의 유해금속 함량에 관한 연구

이진희\*\*\*·김지연\*·박상규\*·이재호\*·윤종호\*·한기동\*\*†

\*대구광역시 보건환경연구원 약품화학과

\*\*영남대학교 생명응용과학대학 식품공학과

### A Study on the Hazardous Metal Content of Herbal Medicines in the Daegu Area

Jin hee Lee\*,\*\*, Ji Yeon Kim\*, Sang Gyu Park\*, Jae Ho Lee\*, Jong Ho Yoon\*, and Gi Dong Han\*\*†

\*Department of Pharmaceutical Chemicals, Daegu Metropolitan City Institute of Health & Environment

\*\*Department of Food Science and Technology, College of Life Applied Science, Yeungnam University

#### ABSTRACT

**Objectives:** The hazardous metals content of medicinal herbs distributed in the Daegu area was investigated, and the place of origin and the content of herbicides and medicinal components were studied.

**Methods:** An analysis of hazardous metals content (10 types) was carried out on 164 samples of 99 types of herbal medicines. Among the total samples, 45 were domestic and 119 were imported. Hg was analyzed by the amalgamation method. Other hazardous metals content (nine types) was digested using the microwave method and measured by inductively coupled plasma optical emission spectrometry (ICP-OES).

**Results:** The mean values of the hazardous metals content in the herbal medicines were Pb 1.0833 mg/kg, As 0.0136 mg/kg, Cd 0.0840 mg/kg, Cr 3.7120 mg/kg, Cu 4.2666 mg/kg, Mn 40.080 mg/kg, Ni 1.4330 mg/kg, Sb 0.1053 mg/kg, Al 202.64 mg/kg and Hg 0.0062 mg/kg. Three of the samples violated the Ministry of Food and Drug Safety (MFDS) regulatory guidance on cadmium (less than 0.3 mg/kg). The measured values of heavy metals (Pb, As, Cd, Hg) showed levels below the recommended levels for herbal medicines in MFDS regulatory guidance. In the comparison of domestic samples with imported herbal medicines, it was found that one domestic and two imported samples surpassed the maximum residue limits for cadmium. The median values of the hazardous metals detected in the three medicinal parts of the root, leaf (branch), and flower (seed and fruit) were as follows. Cr, Ni, Sb and Al were highly detected in roots, Pb, Cd, Mn, Hg in leafs (branch), and As, Cu in flowers (seed and fruit).

**Conclusion:** There were various kinds of hazardous metals which were detected at high levels according to the place of origin of the medicinal herb and the parts the plant. For hazardous metals for which no acceptance criteria have been established, safety standards should be further studied and managed to ensure the safety of herbal medicines.

**Keywords:** Hazardous metal, herbal medicines, ICP-OES, amalgamation method

#### I. 서 론

의료 기술의 발달과 더불어 우리사회는 경제적으로 윤택해지고 있다. 이에 평균수명이 증가함으로써

†Corresponding author: Department of Food Science and Technology, College of Life Applied Science, Yeungnam University, 280 Daehak-Ro, Gyeongsan, Gyeongbuk 38541, Tel: +82-53-810-2957, E-mail: gdhan1@ynu.ac.kr

Received: 25 April 2017, Revised: 18 August 2017, Accepted: 19 August 2017

고령화 및 서구문화 수용에 따른 성인병 증가추세가 심화되고 있다. 건강하게 살고자하는 욕구는 건강에 대한 관심도 증가로 이어졌으며, 이는 다양한 약리 작용으로 응용범위가 넓은 생약 및 한약재에 대한 관심과 수요를 증가시키고 있다. 최근에는 한약재가 당제 및 환과 같은 전통적인 복용 방법 외에도 기능성식품, 추출가공식품, 다류 및 음료류 등 식품의 원료와 화장품의 부 원료로도 넓게 사용되어 우리 생활에 손쉽게 접할 수 있게 되었다.<sup>1,4)</sup>

한약재는 유통체계가 복잡하고 혼합된 체계로 운영되고 있어 관리에 있어 일반식품 및 의약품 원료에 비하여 체계적이지 못하다. 생산, 제도, 유통 단계별로도 구체적이고 실용적인 관리기준이 미흡한 상태에서 소비자에게 공급되기 때문에 한약재의 안전성, 유효성 확보를 위하여 체계적인 연구와 관리 방안이 요구되고 있다.<sup>3,5)</sup> 또한, 한약재 수요 증가로 국내에서 채취하거나 재배하는 한약재로는 수요량에 미치지 못하여 중국 등 여러 외국으로부터 수입해 오고 있다. 이는 유통 한약재의 70~80%가 생산과정에서 비교적 규제 및 감시가 용이한 국내산이 아닌 수입품으로 대체되고 있는 실정으로 그 안전 관리 강화가 절실해지고 있다.<sup>3,5,6)</sup> 식물, 동물, 광물의 천연산물을 건조, 절단 등 그대로 가공하여 약용되어지는 한약재의 특성상 철저한 안전관리가 요구되고 있다. 그러나, 한약재의 안전관리는 한약재의 안전성 및 유효성에 대한 기준 확보와 한약재 재배 농가의 수익과 관련 산업의 부가가치 창출이라는 상반된 입장 차이를 가지고 있다.<sup>7,8)</sup> 산업발달과 인구 증가로 인하여 토양의 환경오염이 증가함으로써 재배 단계 한약재의 유해 중금속과 잔류농약 등과 같은 오염이 점차로 증가 할 것으로 예상되고 있다.<sup>5,6)</sup> 또한, 한약재의 수집, 가공, 저장 포장, 운반 등의 유통과정에서도 이산화황이나 곰팡이 같은 오염도 증가 할 것으로 예상된다.<sup>5,6,9)</sup> 2012년, 2014년에 발생한 부적합 한약재 관련사건의 원인이 카드뮴, 납, 이산화황, 잔류농약 등이 원인인 것을 보아 이와 관련된 항목의 한약재 안전관리에 더 많은 관심이 필요함을 알 수 있다.

한약재는 대한민국의약전외한약(생약)규격집 및 대한민국의약전에 의해 관리되고 있으나, 일부는 식품과 의약품에 공통으로 사용되고 있다. 식품으로 사용 될 때에는 식품공전에 따라 관리되고 있어 유해기준이

다른 품목은 유해물질 관리에 만전을 기하기가 어려운 실정이다. 대한민국의약전외한약(생약)규격집 및 대한민국의약전에는 한약재별로 순도시험항목을 지정하여 이물, 중금속(납, 비소, 수은, 카드뮴), 잔류농약, 이산화황, 곰팡이독소 항목을 차별하여 고시하였다. 대한민국의약전외한약(생약)규격집 및 대한민국의약전의 한약재별 중금속 허용기준을 납 5 mg/kg, 비소 3 mg/kg, 카드뮴 0.3 mg/kg(계지, 목향, 백출, 사삼, 사상자, 속단, 아출, 애엽, 용담, 우슬, 육계, 인진호, 창출, 포공영, 향부자는 0.7 mg/kg, 세신, 오약, 저령, 택사, 황련은 1.0 mg/kg), 수은 0.2 mg/kg 이하로 규정하고 있다. 한약재에 잔류할 가능성이 높은 유해물질 가운데 중금속은 비중이 5.0 이상 되는 금속원소로 납, 비소, 수은, 카드뮴은 인체에 대한 독성이 매우 강한 것으로 알려져 있다. 이들 유해 중금속은 인체 내에서 쉽게 소실되지 않고 축적됨으로서 장기간에 걸쳐 인체에 위해를 가하는 특성이 있다.<sup>10-15)</sup> 그러므로 한약재의 중금속 오염은 큰 문제를 야기할 가능성이 크다.

납은 인체의 거의 모든 조직과 시스템에 영향을 미치고 인체에 축적되는 독성 중금속이다. 임산부는 유산을 할 수 있으며, 남성의 생식 기능도 저해된다. 비소나 비소화합물을 흡입 또는 섭취를 통해 과다노출 되었을 경우 급성 또는 만성적인 독성증상을 나타낼 수 있다. 카드뮴과 그 화합물의 노출은 급성 또는 만성적인 독성과 관련이 있다. 카드뮴 중독은 아주 쉽게 골절이 일어나는 이타이이타이병의 원인이다. 크롬산과 크롬산염에 과다노출 시 피부염, 비염과 비중격천공과 같은 피부궤양, 폐암을 일으킬 수 있다. 또한 특정 6가 크롬화합물은 발암물질로 분류되어있다. 구리는 먼지나 안개에 의해 노출되었을 때 눈, 코, 인두에 자극을 주는데 이로 인해 비강천공, 피부염, 금속성 미각 등이 나타난다. 망간에 과다 노출되었을 때 나타날 수 있는 증상으로는 파킨슨증, 불면증, 정신착란 등이 있다. 필수영양소로 소량 섭취를 권하고 있으나 고용량의 망간 노출은 신경계에 이상을 유발 할 수 있다. 니켈은 과다노출에 의한 잠재적인 증상으로는 민감성피부염, 알레르기성 천식, 폐렴이 있다. 미국의 접촉성피부염학회가 2008년에 ‘올해의 알레르기 유발물질(allergen)’로 선정할 정도로 알레르기 피부 반응을 잘 일으킨다. 안티몬과 그 화합물들은 피부염, 각막염, 결막염을 유발한

다고 알려져 있다. 알루미늄에 장기적으로 노출되었을 때 눈, 피부 호흡기관에 영향을 미칠 수 있다. 알루미늄 화합물은 자연계에 널리 분포되어 있으나, 이들의 생물학적 역할은 아직 알려진 것이 없다. 알루미늄은 거의 독성이 없다. 1980년대에 일부 과학자들이 알루미늄이 치매와 관련될 수 있다고 제안하였으나, 아직 그 연관성은 분명하지 않으며 계속 연구 중에 있다. 수은은 호흡기관, 피부를 통해 쉽게 흡수가 된다. 급성 중독증상으로는 졸이나 열상상태의 수은은 피부나 점막에 접촉 시 구토, 복통, 혈변, 신장손상 및 보통 10일 이내 죽음에 이르게 한다. 일본 해안에서 발생한 미나마타병이 유명한 사례이다.<sup>10,16)</sup>

본 연구에서는 대구광역시 약령시장에서 유통되고 있는 한약재 가운데 국내산 45건, 중국산 95건, 중국 외 수입산 24건에 대하여 유해금속 오염정도를 시험하였다. 한약재 수요 증가에 따라 점점 늘어나는 수입산 뿐만 아니라 국내산 한약재에 대하여도 현재 관리 항목인 납, 비소 카드뮴, 수은과 유해하다고 알려진 비관리 항목인 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬, 알루미늄의 오염도 또한 조사하였다. 국내산, 중국산, 중국 외 수입산의 유해금속 오염도와 약용 부위별 유해금속 오염도를 비교해 봄으로써 우수한 한약재의 선택을 유도하여 향후 시민들의 한약재에 대한 불신 감소와 안전한 관리를 위한 기준설정의 기초자료를 제공하고자 이 연구를 시행하였다.

## II. 재료 및 방법

### 1. 재료

한약재는 2015~2016년 대구광역시 약령시장에서 유통되고 있는 99종류의 국내산 45건, 중국산 95건, 중국 외 수입산 24건 등 164건을 대상으로 하였다.

대상 한약재를 균질분쇄한 후 100g 정도를 취하여 실험 재료로 사용하였다.

### 2. 시약 및 표준품

Nitric acid(Junsei Chemical Co., Ltd. Japan)와 Hydrochloric acid(Daejung chemicals & Metals co., Ltd., Korea)는 유해중금속용을 사용하였으며, 증류수는 Millipore사의 초 순수장치 (Milli-Q Direct 16 system, Darmstadt, Germany)로 제조한 저항값 18.2 MΩ 이상인 정제수를 사용하였다. 분석을 위한 표준용액은 Quality control standard 21(As, Be, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Li, Mg, Mn, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, Sr, Ti, Tl, V, Zn 100 µg/ml, Perkin Elmer, USA)과 Al(1000 µg/ml, Perkin Elmer, USA), Hg(1000 mg/l, Perkin Elmer, USA)을 사용하였으며 회수율 검증을 위해 ERA 표준인증물질(A Waters Company, P255-500)을 사용하였다.

### 3. 실험기기

납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬 및 알루미늄의 시험용액 제조에는 마이크로웨이브 (MARS X traction, CEM, USA)가 사용되었다. 유해금속 분석은 ICP-OES(Optima 8300 DV, Perkin Elmer, USA)를 사용하였다. 수은은 수은분석기(DMA-80 Direct Mercury Atomizer, MILESTONE S&T Co., Ltd., USA)를 사용하였다. 분석조건은 Table 1, 2와 같다.

Table 2. The conditions of mercury analyzer

Parameter	Conditions
Method	Gold amalgamation method-Pyrolysis
Detector	Silicon UV photodetector
Wave length	253.65 nm
Carrier gas	Purified air
Sample forms	Solid, liquid

Table 1. The conditions of ICP-OES spectrometer

Parameter	Wavelength	Parameter	Wavelength	Parameter	Operating conditions
Pb	220.353	Mn	257.610	RF power	1,300 watts
As	193.696	Ni	231.604	Nebulizer flow	0.65 L/min
Cd	228.802	Sb	206.830	Auxiliary flow	0.2 L/min
Cr	267.716	Al	396.153	Plasma flow	12.0 L/min
Cu	327.393			Sample flow	1.5 L/min

**4. 실험방법**

**1) 시료의 전처리**

① 납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬 및 알루미늄

균질 파쇄 한 시료를 마이크로웨이브용 vessel에 약 0.2~0.3 g정도 취하여 질산 9 ml와 염산 1 ml를 가한 후 hood에서 16시간 이상 방치하였다. 예비분해를 한 후 시료를 마이크로웨이브로 분해하였다. 이 액을 증탕으로 증발시킨 후 2%질산용액 10 ml로 녹인 후 시험용액으로 사용하였다.

② 수은

균질 파쇄 한 시료를 전처리 없이 약 40~50 mg정도 취하여 사용하였다.

**2) 검출한계 및 회수율 실험**

검출한계 및 회수율 실험을 위하여 납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬 및 알루미늄은 공시험용 시료로 백단향(2015년산), 수은은 신곡(2015년산)을 사용하였다.

① 검량선 작성

납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬 및 알루미늄은 표준용액을 2%질산용액으로 희석하

여 0.01, 0.2, 1, 2 µg/ml의 농도를 사용하였다. 수은은 표준용액을 0.001% L-cysteine용액으로 희석하여 0.001, 0.002, 0.005, 0.01 µg/ml의 농도를 사용하였다. 납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬 및 알루미늄의 검량선은  $R^2 = 0.9999$  이상이었으며, 수은의 검량선은  $R^2 = 0.9995$ 으로 양호한 직선성을 보였다(Table 3).

② 검출한계와 정량한계

납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬 및 알루미늄은 공시험용 시료에 표준용액(희석 후 농도 0.05 µg/ml, 알루미늄 0.1 µg/ml)을 첨가하여 전처리와 동일하게 처리한 후 측정하여 검출한계, 정량한계 값을 계산하였다. 수은은 공시험용 시료에 표준용액(0.005 µg/ml)을 첨가하여 전처리 없이 측정하여 검출한계, 정량한계 값을 계산하였다(Table 3).<sup>17,18)</sup>

③ 회수율 실험

납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬 및 알루미늄은 공시험용 시료에 적당량의 표준용액(희석 후 농도 0.5 µg/ml)을 첨가한 5개의 시료를 전처리와 동일하게 처리한 후 측정하였다. 수은은 공시험용 시료에 표준용액(0.002 µg/ml)을 첨가한 5개의 시료를 전처리 없이 측정하였다(Table 3).

④ 표준물질의 회수율 실험

**Table 3.** The results from the validation test for the analysis of 10 elements

Element	Recovery(%) <sup>1)</sup>	RSD(%) <sup>2)</sup>	LOD(µg/kg) <sup>3)</sup>	LOQ(µg/kg) <sup>4)</sup>	Linearity(R <sup>2</sup> )
Pb	98.4	0.7	1.48	4.89	>0.9999
As	98.6	1.6	2.86	9.45	>0.9999
Cd	97.8	1.4	0.40	1.32	>0.9999
Cr	99.2	2.0	0.28	0.92	>0.9999
Cu	102.4	4.5	0.51	1.68	>0.9999
Mn	96.5	1.3	0.64	2.10	>0.9999
Ni	100.0	1.7	0.79	2.60	>0.9999
Sb	93.4	1.1	2.58	8.50	>0.9999
Al	112.4	3.8	4.86	16.05	>0.9999
Hg	102.9	4.4	0.0002	0.0007	>0.9995

<sup>1)</sup> Mean values obtained from five measurements

<sup>2)</sup> Standard deviation/Mean value ×100

<sup>3)</sup> Limit of detection = 3 ×σ/m (σ: STDEV of area, m: slope of calibration curve)

<sup>4)</sup> Limit of quantitation = 3.3 × LOD

**Table 4.** The measurement of certified reference material(CRM)

Element	Certified		Measured		Recovery(%)	RSD(%) <sup>3)</sup>
	Mean(µg/ml) <sup>1)</sup>	Uncertainty(%)	Mean(µg/ml)	SD <sup>2)</sup>		
Pb	0.302	0.466	0.3174	0.0018	105.1	0.57
As	0.389	0.574	0.4002	0.0018	102.9	0.45
Cd	0.743	0.460	0.7704	0.0021	103.7	0.27
Cr	0.645	6.240	0.6750	0.0014	104.7	0.20
Cu	0.727	0.458	0.7718	0.0013	106.2	0.17
Mn	0.424	0.460	0.4540	0.0007	107.1	0.16
Ni	1.150	0.458	1.2176	0.0022	105.9	0.18
Sb	0.334	0.602	0.3538	0.0011	105.9	0.31
Al	1.960	4.980	1.8832	0.0128	96.1	0.68
Hg	0.766	0.700	0.7734	0.0009	101.0	0.12

<sup>1)</sup> Mean values obtained from three measurement

<sup>2)</sup> Standard deviation

<sup>3)</sup> Standard deviation/Mean value ×100

회수율 검증 및 분해효율과 측정감도를 비교하기 위하여 일정농도의 금속을 함유하고 있는 표준인증 물질(certified reference material : ERA(A Waters Company, P255-500))을 이용하여 납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬 및 알루미늄은 3개의 시료를 전처리와 동일하게 처리한 후 측정하였다. 수은은 전처리 없이 3번 측정하였다(Table 4).

**5. 통계처리**

자료의 통계처리는 결과 값을 log값으로 전환하여 SAS version 9.2 for Windows(SAS Institute, Cary, NC, USA)를 이용하였다. 원산지별 유해금속 검출 농도를 비교하기 위하여 국내산 한약재, 중국산 한약재, 중국 외 수입 한약재로 분류하였다. 또한, 약용부위별 유해금속 검출 농도를 비교하기 위하여로 뿌리, 줄기(잎), 꽃(열매, 씨)의 한약재로 분류하였다. ANOVA 분석 후 결과 값의 유의성을 검증하였으며 (p<0.05) 사후 검정으로 Tukey법을 실시하였다.

**III. 결 과**

**1. 유통 한약재의 유해금속 함량**

국내산 45건, 중국산 95건, 중국 외 수입산 24건에 대하여 납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬, 알루미늄 및 수은의 유해금속 오염도를 분석하였다. 한약재 164건에 대한 검출 유해금속 평균

은 납 1.0833 mg/kg, 비소 0.0136 mg/kg, 카드뮴 0.0840 mg/kg, 크롬 3.7120 mg/kg, 구리 4.2666 mg/kg, 망간 40.080 mg/kg, 니켈 1.4330 mg/kg, 안티몬 0.1053 mg/kg, 알루미늄 202.64 mg/kg, 수은 0.0062 mg/kg이었다. 유해금속 가운데 납, 비소, 카드뮴, 수은은 현재 대한민국약전의한약(생약)규격집과 대한민국의약전에 한약재별 중금속 허용기준이 설정되어 있으며(Table 5), 허용기준에 비교해 봤을 때 카드뮴이 감초(우즈베키스탄) 0.3577 mg/kg, 절패모(중국) 0.3804 mg/kg, 시호(한국) 0.3740 mg/kg로 그 기준보다 과량 검출되었으며,<sup>19,21)</sup> 그 외 항목은 기준에 적합하였다.<sup>21-23)</sup> 허용기준이 없는 항목은 허용기준이

**Table 5.** The heavy metals acceptable concentration in medical herb

Parameter	Acceptable concentration
Pb	5 mg/kg
As	3 mg/kg
Cd	0.3 mg/kg (0.7 mg/kg <sup>1)</sup> , 1.0 mg/kg <sup>2)</sup> )
Hg	0.2 mg/kg

<sup>1)</sup> Cinnamoni Ramulus, Aucklandiae Radix, Atractylodes Rhizome White, Adenophorae Radix, Cnidi Fructus, Dipsaci Radix, Zedoary, Artemisiae Argyi Folium, Fel Ursi, Achyranthos Root, Cinnamon Bark, Artemisiae Capillaris Herba, Atractylodes Rhizome, Taraxaci Herba, Cyperus Rhizome

<sup>2)</sup> Asiasarum Root and Rhizome, Lindera Root, Polyporus Sclerotium, Alisma Rhizome, Coptis Rhizome

**Table 6.** The hazardous metals concentration in medical herb(mg/kg)

Element	Mean (N <sup>1)</sup> = 164)	Min. concentration	Max. concentration	SD <sup>3)</sup>	No. of Samples Detected(%)
Pb	1.0833	ND <sup>2)</sup>	4.9402	0.9904	142(86.6)
As	0.0136	ND	0.9259	0.0922	6(3.7)
Cd	0.0840	ND	0.6427	0.1073	110(67.1)
Cr	3.7120	ND	37.229	6.6255	138(84.1)
Cu	4.2666	ND	27.840	3.6161	163(99.4)
Mn	40.080	ND	415.24	65.040	163(99.4)
Ni	1.4330	ND	16.160	1.7967	163(99.4)
Sb	0.1053	ND	1.4065	0.2000	54(32.9)
Al	202.64	ND	2064.0	315.85	161(98.2)
Hg	0.0062	ND	0.0469	0.0075	156(95.1)

<sup>1)</sup> Number of samples

<sup>2)</sup> Not detected

<sup>3)</sup> Standard deviation

있는 항목보다 높은 값으로 검출되었다. 한약재의 유해금속 검출량은 Table 6과 같다.

## 2. 원산지별 한약재의 중금속 함량 비교

국내산, 중국산, 중국 외 수입 한약재 등 세 그룹간의 유해금속 오염도를 비교하기 위하여 납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬, 알루미늄 및 수은의 오염량을 분석하였다. 국내산 한약재 평균 검출량은 납 1.0257 mg/kg, 비소 불검출, 카드뮴 0.0981 mg/kg, 크롬 5.4528 mg/kg, 구리 3.8347 mg/kg, 망간 43.681 mg/kg, 니켈 1.9561 mg/kg, 안티몬 0.1256 mg/kg, 알루미늄 209.64 mg/kg, 수은 0.0030 mg/kg 이었다. 중국산 한약재 평균 검출량은 납 1.1774 mg/kg, 비소 0.0234 mg/kg, 카드뮴 0.0756 mg/kg, 크롬 3.6115 mg/kg, 구리 3.9803 mg/kg, 망간 25.045 mg/kg, 니켈 1.2164 mg/kg, 안티몬 0.0935 mg/kg, 알루미늄 196.72 mg/kg, 수은 0.0075 mg/kg이었다. 중국 외 수입 한약재 평균 검출량은 납 0.8186 mg/kg, 비소 불검출, 카드뮴 0.0910 mg/kg, 크롬 0.8459 mg/kg, 구리 6.2093 mg/kg, 망간 92.840 mg/kg, 니켈 1.3096 mg/kg, 안티몬 0.1140 mg/kg, 알루미늄 212.92 mg/kg, 수은 0.0068 mg/kg이었다.

원산지별 비교결과 납, 비소는 중국산 한약재, 카드뮴, 크롬, 니켈, 안티몬은 국내산 한약재, 구리, 알루미늄은 중국 외 수입 한약재에서 평균 검출량이 높게 검출된 편이었으나 통계적으로는 유의하지 않았다. 그러나 수은은 중국산 한약재, 망간은 중국 외

수입 한약재에서 평균 검출량이 높게 검출되었으며 통계적으로 유의하였다. 망간은 전체적으로는 유의하였으나 국내산과 중국산 한약재, 국내산과 중국 외 수입 한약재는 유의하지 않고, 중국산과 중국 외 수입 한약재는 유의하였다. 수은은 전체적으로는 유의하였으나 중국산과 중국 외 수입 한약재는 유의하지 않고 국내산 과 중국산 한약재, 국내산 한약재와 중국 외 수입 한약재는 유의하였다. 원산지별 비교결과 각 원산지별로 높게 검출된 유해금속의 종류가 다양하다는 다른 보고와 유사한 결과를 보였다(Table 7).<sup>19,24,25)</sup>

## 3. 약용부위별 한약재의 중금속 함량 비교

약용 부위가 다른 5건을 제외한 한약재 159건을 대상으로 한약재 약용 부위별로 뿌리, 잎(줄기), 꽃(열매, 씨)의 세 그룹으로 분리하여 유해금속 오염도 비교를 위하여 납, 비소, 카드뮴, 크롬, 구리, 망간, 니켈, 안티몬, 알루미늄 및 수은의 오염량을 분석하였다. 뿌리 부분에 대한 평균 검출량은 납 1.1265 mg/kg, 비소 0.0012 mg/kg, 카드뮴 0.0999 mg/kg, 크롬 4.6865 mg/kg, 구리 4.2507 mg/kg, 망간 40.109 mg/kg, 니켈 1.6970 mg/kg, 안티몬 0.1230 mg/kg, 알루미늄 238.03 mg/kg, 수은 0.0063 mg/kg 이었다. 잎(줄기) 부분에 대한 평균 검출량은 납 1.2053 mg/kg, 비소 0.0071 mg/kg, 카드뮴 0.1319 mg/kg, 크롬 2.0025 mg/kg, 구리 2.7428 mg/kg, 망간 68.908

**Table 7.** The hazardous metals concentration in medical herbs among the country of origin(mg/kg)

Element	Korea (N <sup>1)</sup> =45)	China (N <sup>1)</sup> =95)	Other imported (N <sup>1)</sup> =24)
	Mean concentration (Standard deviation) [minimum - Maximum]		
Pb	1.0257 (0.9482) [ND <sup>2)</sup> - 3.2332]	1.1774 (1.0166) [ND - 4.9402]	0.8186 (0.9444) [ND - 3.0979]
As	ND	0.0234 (0.1204) [ND - 0.9259]	ND
Cd	0.0981 (0.0948) [ND - 0.3741]	0.0756 (0.1045) [ND - 0.6427]	0.0910 (0.1380) [ND - 0.5923]
Cr	5.4528 (7.5530) [ND - 35.186]	3.6115 (6.7524) [ND - 37.229]	0.8459 (1.0377) [ND - 3.5562]
Cu	3.8347 (3.1422) [0.3963 - 13.909]	3.9803 (2.9822) [ND - 19.365]	6.2093 (5.7265) [0.8145 - 27.840]
Mn <sup>6)</sup>	43.681 (68.874) [1.8088 - 368.51]	25.045 (38.616) <sup>3)</sup> [ND - 232.12]	92.840 (104.63) <sup>3)</sup> [4.1629 - 415.23]
Ni	1.9561 (2.7823) [0.1379 - 16.160]	1.2164 (1.1966) [ND - 6.7848]	1.3096 (1.2125) [0.0426 - 5.2038]
Sb	0.1256 (0.2086) [ND - 0.8861]	0.0935 (0.1631) [ND - 0.8574]	0.1140 (0.3000) [ND - 1.4065]
Al	209.64 (435.00) [1.9718 - 2064.0]	196.72 (254.94) [ND - 1542.2]	212.92 (281.07) [ND - 1044.7]
Hg <sup>6)</sup>	0.0030 (0.0021) <sup>4)5)</sup> [0.0001 - 0.0081]	0.0075 (0.0082) <sup>4)</sup> [0.0001 - 0.0417]	0.0068 (0.0097) <sup>5)</sup> [ND - 0.0469]

<sup>1)</sup> Number of samples

<sup>2)</sup> Not detected

<sup>3)4)5)</sup> p-value shows significant differences of hazardous metal concentration in medical herbs between the country of origin(p<0.05)

<sup>6)</sup> p-value shows significant differences of hazardous metal concentration in medical herbs among the three groups(p<0.05)

mg/kg, 니켈 0.9352 mg/kg, 안티몬 0.0476 mg/kg, 알루미늄 178.09 mg/kg, 수은 0.0086 mg/kg이었다. 꽃(열매, 씨) 부분에 대한 평균 검출량은 납 1.0184mg/kg, 비소 0.0274 mg/kg, 카드뮴 0.0444 mg/kg, 크롬 3.0540 mg/kg, 구리 5.1936 mg/kg, 망간 32.219 mg/kg, 니켈 1.2997 mg/kg, 안티몬 0.1031 mg/kg, 알루미늄 139.73 mg/kg, 수은 0.0052 mg/kg이었다.

약용 부위별 비교결과 크롬, 니켈, 안티몬은 뿌리 부분, 납, 수은은 잎(줄기) 부분, 비소는 꽃(열매, 씨) 부분 한약재에서 평균 검출량이 높게 검출된 편이었으나 통계적으로는 유의하지 않았다. 그러나 알루미늄은 뿌리 부분, 카드뮴, 망간은 잎(줄기) 부분, 구리는 꽃(열매, 씨) 부분 한약재에서 평균 검출량이 높게 검출되었으며 통계적으로 유의하였다.<sup>26-28)</sup> 카드뮴

은 전체적으로는 유의하며, 뿌리와 잎(줄기), 뿌리와 꽃(열매, 씨)는 유의하지 않고, 잎(줄기)와 꽃(열매, 씨)는 유의하였다. 구리는 전체적으로는 유의하며, 뿌리와 꽃(열매, 씨)는 유의하지 않고, 뿌리와 잎(줄기), 잎(줄기)와 꽃(열매, 씨)는 유의하였다. 망간은 전체적으로는 유의하며, 뿌리와 잎(줄기), 뿌리와 꽃(열매, 씨)는 유의하지 않고, 잎(줄기)와 꽃(열매, 씨)는 유의하였다. 알루미늄은 전체적으로는 유의하며, 뿌리와 잎(줄기), 잎(줄기)와 꽃(열매, 씨)는 유의하지 않고, 뿌리와 꽃(열매, 씨)는 유의하였다. 약용 부위별 비교에서도 높게 검출된 유해금속의 종류는 다양하다는 다른 보고와 유사한 결과를 보였다.<sup>19,24,29,30)</sup> 비교적 높은 농도로 검출된 알루미늄은 뿌리부분, 카드뮴, 망간은 잎(줄기)부분, 구리는 꽃(열매, 씨) 부

**Table 8.** The hazardous metals concentration in medical herb among the part(mg/kg)

Element	Root (N <sup>1)</sup> =88)	Leaf(Branch) (N <sup>1)</sup> =20)	Flower(Fruit, Seed) (N <sup>1)</sup> =51)
	Mean concentration (Standard deviation) [minimum - Maximum]		
Pb	1.1265 (1.0277) [ND <sup>2)</sup> - 4.9402]	1.2053 (0.9484) [ND - 3.0979]	1.0184 (0.9738) [ND - 4.0724]
As	0.0012 (0.0108) [ND - 0.1016]	0.0071 (0.0317) [ND - 0.1418]	0.0274 (0.1420) [ND - 0.9259]
Cd <sup>9)</sup>	0.0999 (0.1176) [ND - 0.6427]	0.1319 (0.1424) <sup>4)</sup> [ND - 0.5923]	0.0444 (0.0482) <sup>4)</sup> [ND - 0.1821]
Cr	4.6865 (7.4656) [ND - 35.186]	2.0025 (3.3628) [ND - 11.765]	3.0540 (6.1033) [ND - 37.229]
Cu <sup>9)</sup>	4.2507 (2.9165) <sup>5)</sup> [0.5376 - 16.147]	2.7428 (1.9810) <sup>5)6)</sup> [0.3781 - 8.9031]	5.1936 (4.8508) <sup>6)</sup> [0.3963 - 27.840]
Mn <sup>9)</sup>	40.109 (70.918) [1.8088 - 415.23]	68.908 (70.039) <sup>7)</sup> [2.3629 - 232.12]	32.219 (51.474) <sup>7)</sup> [2.3704 - 253.86]
Ni	1.6970 (2.2380) [0.0656 - 16.160]	0.9352 (1.0266) [0.1379 - 3.7813]	1.2997 (0.9995) [0.0426 - 5.2038]
Sb	0.1230 (0.1957) [ND - 0.8861]	0.0476 (0.0880) [ND - 0.2575]	0.1013 (0.2386) [ND - 1.4065]
Al <sup>9)</sup>	238.03 (351.16) <sup>8)</sup> [2.4159 - 2064.0]	178.09 (260.52) [ND - 1044.7]	139.73 (199.06) <sup>8)</sup> [ND - 831.38]
Hg	0.0063 (0.0076) [0.0001 - 0.0417]	0.0086 (0.0075) [0.0001 - 0.0303]	0.0052 (0.0076) [0.0001 - 0.0469]

<sup>1)</sup> Number of samples

<sup>2)</sup> Not detected

<sup>3)4)5)6)7)8)</sup> p-value shows significant differences of hazardous metal concentration in medical herbs between the country of origin(p<0.05)

<sup>9)</sup> p-value shows significant differences of hazardous metal concentration in medical herbs among the three groups(p<0.05)

분 한약재를 약용하는 경우 다소 주의해야 할 것으로 사료된다(Table 8).

#### IV. 결론 및 고찰

대구 약령시장에서 유통되고 있는 한약재 가운데 국내산 45건, 중국산 95건, 중국 외 수입산 24건에 대하여 유해금속 오염정도를 시험하였다. 설정된 허용기준과 비교해 봤을 때 감초(우즈베키스탄) 0.3577 mg/kg, 절편모(중국) 0.3804 mg/kg, 시호(한국) 0.3740 mg/kg으로 카드뮴이 기준보다 약간 높게 검출되었으며, 허용기준이 없는 항목가운데 망간, 알루미늄이 대체로 높게 검출되는 것으로 조사되었다. 국내산 한약재의 유해금속 오염 수준이 수은을 제외하고 수입산 한약재와 비슷한 것으로 나타났으며 WHO, 미국, 중국과 같이 구리, 아연의 허용기준을 추가로

설정하는 등 관리를 강화 할 필요성이 있겠다. 국내산, 중국산, 중국 외 수입 등 원산지별 비교에서, 납, 비소, 수은은 중국산 한약재, 카드뮴, 크롬, 니켈, 안티몬은 국내산 한약재, 구리, 망간, 알루미늄은 중국 외 수입산 한약재에서 높게 검출되어 원산지별 특성에 따라 차이가 있는 것으로 나타났다. 뿌리, 잎(줄기), 꽃(씨열매)의 세 가지 약용부위별 비교에서 검출된 유해금속 평균값을 보면 크롬, 니켈, 안티몬, 알루미늄은 뿌리 부분, 납, 카드뮴, 망간, 수은은 잎(줄기) 부분, 비소, 구리는 꽃(씨열매) 부분 한약재에서 가장 높은 농도로 검출되었으며, 비교적 높은 농도로 검출된 망간은 잎(줄기)부분 한약재를 약용할 때 그리고 알루미늄은 뿌리 부분 한약재를 약용할 때 다소 주의할 필요가 있는 것으로 나타났다. 한약재 원산지별, 약용부위별에 따라 높게 검출되는



유해금속의 종류가 다양하기 때문에 약용으로 사용 시에는 같은 효능을 가진 경우 비교적 유해금속 검출량이 적게 나타나는 부위를 선택하는 것도 하나의 방법이라 사료된다. 한약재의 섭취 실태에 관해서는 한약재 일평균 섭취량 범위가 1.6~48.0 g으로 보고 된바 있으나<sup>6)</sup> 유해금속이 용출되는 한약재의 섭취에 관한 구체적인 연구는 별도로 수행되어야 할 것으로 사료된다. 그리고 일부 시료에서 카드뮴 기준치를 초과하는 결과로 보아 유통단계에서 보다 품질관리를 강화하여야 하겠으며 허용기준이 설정되지 않은 유해금속에 대해서는 한약재의 안전성을 보장하기 위해 안전기준을 설정하는 등 더 많이 연구되고 관리되어야 할 것으로 판단된다.

References

1. Sohn ES, Kim SW, Kang JS, Lee SP. Domestic R&D trend analysis of functional food using medical plants. *Applied Chemistry*. 2004; 8(2): 470-73.
2. Lee JM, Lee SH, Kim HM. Use of oriental herbs as medical food. *Food Industry and Nutrition*. 2000; 5(1): 50-56.
3. Kwon YH. A Study on Efficient distribution structure study of medicinal plants. [Asan]: Hoseo University; 2014.
4. SHU-MEI LI, YANG FANG, HONG-MEI NING, YING XIA WU. Heavy Metals in Chinese Therapeutic Foods and Herbs. *Journal of the Chemical Society of Pakistan*. 2012; 34(5): 1091-1095.
5. Kim SJ. A study on the Pattern and Pricing Structure of Major Oriental Medicines in Korea (A0063-65610-57-0109). Korea Health Industry Development Institute. 2001: 10-12.
6. Lee JT, Song BG. Research on Intake of Chinese Medicine by Korean. Ministry of Food and Drug Safety. 2006: 43-49.
7. Cho JH, Kim DH, Kim HS, Oh MH, Kang IH, Shim YH et al. Monitoring research for residual pesticides as endocrine disruptors in natural medicines(1). *Korean Journal of Pharmacognosy*. 2000; 31(4): 455-458.
8. Cho HJ, Hwang IS, Choi BH, Bae CH, Kim MH. Determination of residual pesticides in crude drugs-Gas Chromatographic Analysis of 18 pesticides. *Korean Journal of Pharmacognosy*. 2001; 32(3): 200-211.
9. Xudong Yuan, Koh Hwee Ling, Chui Wai Keung.

The Analysis of Heavy Metals in Chinese Herbal Medicine by Flow Injection-Mercury Hydride System and Graphite Furnace Atomic Absorption Spectrometry. *Phytochemical Analysis*. 2009; 20: 293-297.

10. The Merck Index. 13th Ed. 2001; pp. 60, 117, 136, 272, 387, 440, 967, 1024, 1053, 1165.
11. Joh HL, Lee SD. Effect of SipJeonDaeBo-Decoction on Blood Metal Level in Rats. *Korean Journal of Oriental Preventive Medical Society*. 1999; 3(2): 151-170.
12. Min DK, Goh SK, Lee SD, Wen Y. Brain Metal Level in *Ohjeoksan*-Treated Rats. *Korean Journal of Oriental Preventive Medical Society*. 2000; 4(2): 242-257.
13. Yoon SW, Lee SD. Effect of SipJeonDaeBo-Decoction on Target Organ Metal Level in Rats. *Korean Journal of Oriental Preventive Medical Society*. 2000; 4(1): 51-69.
14. Park CS, Lee SD, Park HM, Park YC. Comparison of Liver, Kidney, Bone Metal Concentration in *OhJeokSan*-Treated Rats. *Korean Journal of Oriental Preventive Medical Society*. 2002; 6(2): 66-85.
15. Shuiping Cheng. Heavy Metal Pollution in China: Origin, Pattern and Control. *Environment Science and Pollution Research*. 2003; 10(3): 192-198.
16. World Health Organization. Available: <http://www.who.int/mediacentre/factsheets/en/> [accessed 17 July 2017].
17. Croghan C, Park NC, Egeghy PP. Methods of dealing with values below the limit of detection using SAS. St. Petersburg, FL. 2003; September 22-24.
18. Kwon JW. Definition and application of detection and quantification limits. *Korean Journal of Environmental Agriculture*. 2009; 85-102.
19. Hong YJ, Kwak JE, Park WH, Hwang YS, Kim EJ, Park AS et. al. Trace metal contents of herbal medicines in Seoul area by CP-MS. Report of Seoul Institute Health Environment. 2006; 2: 286-298.
20. Kwak JE, Shin Y, Han CH, Hwang YS, Park AS, Kim DG et al. Heavy metal contents in herbal medicines used as food material from markets in Seoul. Report of Seoul Institute Health Environment. 2007; 43: 129-140.
21. Jang S, Kim TH, Lee AR, Lee AY, Choi GA, Kim HK. Monitoring of heavy metal contents in commercial herbal medicines. *Korean Journal of Medicinal Crop Science*. 2012; 20(6): 434-439.
22. Jung DH, Park MK. The content of heavy metals in manufactured herbal medicines. *Journal of the Environmental Sciences*. 2008; 17(1): 129-133

23. Lee MG, Park JS, Yim HC, Na HS. Determination of heavy metal contents in medicinal herb. *The Journal of Korean Society of Food Preservation*. 2008; 4: 253-260.
24. Shin Y, Kwak JE, Han CH, Hwang YS, Park AS, Kim DG et al. Monitoring of heavy metals in herbal medicines from markets in Seoul by ICP-MS. Report of Seoul Institute Health Environment. 2007; 43: 226-246.
25. Jang S, Lee AR, Lee AE, Choi GY, Kim HK. Monitoring of heavy metal contents in commercial herbal medicines in Korea-cultivated herbal medicines in the Seoul and Daegu areas. *Journal of Environmental Health Sciences*. 2015; 41(1): 30-39.
26. Kim DG, Kim BS, Han EJ, Han CH, Kim OH, Choi BH et al. Distribution of hazardous heavy metals in commercial herbal medicines classified by plant parts used in seoul. *ANALYTICAL SCIENCE & TECHNOLOGY*. 2009; 22(6): 504-513.
27. Jung SJ, Kang ST, Han CH, Kim SJ, Ko SK, Kim YH et al. Survey of Heavy Metal Contents and Intake Rates After Decoction in Herbal Medicines Classified by Parts. *Journal of Food Hygiene and Safety*. 2010; 25(4): 402-409.
28. Adelinesuyien Ting, Yiingyng Chow, Weishang Tan. Microbial and heavy metal contamination in commonly consumed traditional Chinese herbal medicines. *Journal of Traditional Chinese Medicine*. 2013; 33(1): 119-124.
29. Han EJ, Kim DG, Han CH, Kim OH, Kwak JE, Jung SJ et al. Heavy metal contents of herbal medicines in common use for food and medicine from markets in Seoul. Report of Seoul Institute Health Environment. 2008; 44: 126-139.
30. Hwang KH, Lee SD, Lee JS, Ko SK, Kim HS, Kim YK et al. Heavy metal contents of herbal medicines unregistered in official compendiums. Report of Seoul Institute Health Environment. 2011; 47: 59-68.