

The content and risk assessment of heavy metals in commercial herbal medicines

Young Shin[★], Sang-Hun Park, Seung-Hye Han, So-Hyun Park, Ji-Hye Kim, Hyun-Jung Jang, Ae-Kyoung Kim, and Ju-Seung Park

Seoul Metropolitan Government Research Institute of Public Health and Environment,
202-3 Yangjae-dong, Seocho-gu, Seoul 137130, Korea

(Received May 22, 2023; Revised June 24, 2023; Accepted June 27, 2023)

서울지역 유통한약재의 중금속 함량 및 위해성 평가

신 영[★] · 박상훈 · 한성희 · 박소현 · 김지혜 · 김애경 · 박주성

서울시보건환경연구원 강북농수산물검사소

(2023. 5. 22. 접수, 2023. 6. 24. 수정, 2023. 6. 27. 승인)

Abstract: This study investigated the contents of Pb, Cd, As, and Hg for 4333 samples with 209 types of herbal medicines distributed in Seoul area from 2019 to 2021, and evaluated risk assessment according to medicinal part used and origin. The contents of heavy metals were analyzed by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) and mercury analyzer. The average contents (mg/kg) of heavy metals by medicinal parts were 0.123 to 1.290 for Pb, 0.018 to 0.131 for Cd, 0.034 to 0.290 for As, and 0.003 to 0.015 for Hg. The contents of Pb were higher in Leaves and Whole Herbs (above-ground part) than underground part (Radix & Rhizoma) (ANOVA-test, $p < 0.05$). The contents of Cd were high in Leaves, Radix & Rhizoma, and Stems & Woods (ANOVA-test, $p < 0.05$), and exceeded regulatory limits in various types. Levels of Pb, Cd concentrations exceeding regulatory limits were observed in 8, 22 samples (8, 14 types). No sample exceeded regulatory limits of As and Hg. In the comparison between countries of origin, the contents of Cd, As, and Hg were high in imported herbal medicines (t-test, $p < 0.05$). As a result of the risk assessment, except for Thujae Orientalis Folium and Spirodelae Herba, the MOE values of Pb were all 1 or more, and most samples were safe. The Hazard Index (HI) for Cd, As, and Hg were evaluated to be less than 100 % even if the risk (%) of each heavy metal was added, and the risk from taking herbal medicines was evaluated to be safe.

요약: 2019~2021년 동안 서울지역에서 유통되는 한약재 209품목 4333건을 대상으로 ICP-MS와 수은 분석기를 사용하여 유해 중금속인 납, 카드뮴, 비소, 수은의 함량을 조사하고, 약용부위와 원산지에 따라 구분하여 위해성을 평가하였다. 부위별 평균함량(mg/kg)은 납은 0.123~1.290, 카드뮴은 0.018~0.131, 비소는 0.034~0.290, 수은은 0.003~0.015이었다. 납은 지상부위인 전초류와 엽류가 높았으며(ANOVA-test, $p < 0.05$), 카드뮴은 엽류, 근(경)류, 등목류가 높았으며(ANOVA-test, $p < 0.05$), 14 품목에서 카드뮴 기준

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)2-940-9852 Fax : +82-(0)2-964-8175

E-mail : shinyoung@seoul.go.kr

This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

치를 초과하였다. 납과 카드뮴의 기준치를 초과한 시료는 각각 8, 22개였다. 비소는 엽류, 화류, 전초류에서, 수은은 엽류, 전초류, 등목류가 유의적인 수준(ANOVA-test, $p < 0.05$)에서 높았으나 기준을 초과한 시료는 없었다. 원산지간 비교에서 카드뮴, 비소, 수은은 국산보다 수입한약재의 함량이 높았다(t -test, $p < 0.05$). 위해도 평가 결과, 납은 대부분의 시료에서 MOE 값이 1 이상으로 인체노출에 의한 우려는 낮았지만 국산 측백엽과 수입 부평이 각각 0.85, 0.17로 1 보다 낮았다. 카드뮴, 비소, 수은의 위해지수(HI)는 각각의 중금속 위해도를 모두 더하여도 100% 이하로 평가되어 한약재 복용으로 인한 위해성은 안전한 수준으로 평가되었다.

Key words: herbal medicines, heavy metals, risk assessment

1. 서 론

전통적으로 질병 치료를 목적으로 사용되었던 한약재는 사회경제의 발전과 함께 건강 예방과 체력 회복을 위한 건강 기능성 식품 등으로도 사용이 증가하고 있다. 최근 코로나바이러스감염증-19가 확산되면서 면역력 증강이나 환자의 후유증 및 치료에 대한 관심으로 청폐배독탕 같은 한약에 대한 관심이 높아지고 있다.^{1,2} 이와 함께 한약의 수요가 급증함에 따라 안전성에 대한 우려 역시 커지고 있으며 한약재의 품질검사 중 안전성 검사는 중금속, 잔류이산화황, 잔류농약, 곰팡이독소, 벤조피렌 등 인체 유해성을 판단하는데, 이중 중금속은 인체에 유해한 유해중금속의 함유량을 분석한다.

한약재는 자연에서 존재하는 다양한 식물, 동물, 광물 등을 그대로 사용하거나 가공하여 사용한다. 특히, 식물한약재의 경우 토양 등의 자연환경을 기반으로 재배되기 때문에, 산업폐기물 등이 농경지로 유입되어 오염될 가능성이 있다. 또한, 매연이나 분진 등 대기 오염 물질에 함유된 중금속이 한약재로 이행될 수 있으며, 채취, 수확, 가공과정에서 품질관리 기준을 준수하지 않으면 이물질 등이 혼입될 수 있다. 이러한 중금속 오염으로 인해 한약재의 품질이 저하되면서 인체도 중금속 오염에 노출될 가능성이 증가하였다.³ 중금속은 비중이 4 이상으로 이동성이 적고, 토양 내에서 수년에서 수십 년의 반감기를 가지고 있어 쉽게 분해되지 않고 축적되어 토양을 오염시키고, 미량일지라도 장기간 섭취하는 경우 체내에 축적량이 문제가 될 수 있다.

생약에 대한 중금속 허용기준은 1990년대에 총 중금속(30 ppm이하)으로 시작하여, 2006년에는 개별중금속(납 5 mg/kg, 비소 3 mg/kg, 카드뮴 0.3 mg/kg, 수은 0.2 mg/kg이하)으로 개정되었다. 2011년에는 안

전성 강화를 위해 생약 등의 오염 잔류물질 기준규격 운영에 적정을 기하고자 세신 등 5품목에 대해서는 카드뮴 기준을 1.0 mg/kg으로, 계지 등 15품목에 대해서는 0.7 mg/kg으로 조정하였다.^{4,6}

현재까지 국내외에서 한약재 중금속에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다. 이를 통해 허용 기준치 이상의 금속이 검출되는 한약재에 관한 조사나⁷⁻⁹ 실제 복용하는 제형형태(탕액과 환제)에 따른 금속함량의 변화비교,^{10,11} 국내산과 수입산 약재의 금속함량 비교^{12,13} 등이 있다. 한약재는 천연물을 그대로 또는 가공하여 약용되는 것이므로 품질관리를 위하여 유효성과 안전성 확보가 우선으로 고려되어야 한다.

본 연구에서는 서울지역에서 최근 3년간 유통되고 있는 한약재를 대상으로 납, 카드뮴, 비소, 수은의 중금속 함유량을 측정하여 국산과 수입산으로 나누어 비교하고, 또한 한약재의 성질과 효능을 파악하는데 도움이 되는 약용부위에 따라 비교하여 부위별 특성에 따라 오염정도를 파악하여 이들의 상관성을 조사하고 이를 바탕으로 한약 복용으로 인한 위해도를 평가하여 제공함으로써 보다 안전한 한약재가 유통되는데 근거자료로 활용하고자 한다.

2. 재료와 방법

2.1. 재료 및 시약

2.1.1. 실험재료

2019년부터 2021년까지 서울시 동대문구 약령시장 등에서 유통되고 있는 국산 및 수입 한약재 209품목 4333건을 대상으로 사용하였다. 수거된 한약재는 서울시 보건환경연구원 강북농수산물검사소 한약재 성상 검사 전문위원들에게 기원, 약용부위 등을 감별검사 받은 후 분쇄기(CA338-G, Hanil, Seoul, Korea)로 분쇄하여 기밀용기에 넣어 -20 °C로 냉동보관하여 분

Table 1. List of the herbal medicines used for monitoring

Medicinal Parts Used	N(n) ¹⁾	Herbal medicines
Fructus	36(700)	Terminaliae Fructus (14/-/14) ²⁾ , Lycii Fructus (27/5/22) Rosae Laevigatae Fructus (9/-/9), Zizyphi Fructus (19/19/-) Vitici Fructus (14/-/14), Amomi Fructus Rotundus (19/-/19) Rubi Fructus (5/-/5), Amomi Fructus (34/-/34) Crataegi Fructus (45/-/45), Corni Fructus (41/21/20) Forsythiae Fructus (33/-/33), Mume Fructus (12/-/12) Schisandrae Fructus (25/12/13), Evodiae Fructus (15/-/15) Longan Arillus (45/-/45), Arctii Fructus (21/-/21) Alpiniae Oxyphyllae Fructus (16/-/16), Kochiae Fructus (10/-/10) Ponciri Fructus Immaturus (32/1/31), Tribuli Fructus (15/-/15) Xanthii Fructus (11/-/11), Amomi Tsao-ko Fructus (20/-/20) Gardeniae Fructus (39/10/29), Foeniculi Fructus (8/-/8) Chaenomelis Fructus (23/14/9), Cnidii Fructus (16/-/16) Mori Fructus (8/-/8), Anethi Fructus (9/-/9) Ligustri Fructus (17/-/17), Perillae Semen (20/-/20) Aurantii Fructus Immaturus (36/-/36), Hoveniae Semen Cum Fructus (8/-/8) Meliae Fructus (5/-/5), Piperis Longi Fructus (8/-/8) Carthami Fructus (11/1/10), Piperis Nigri Fructus (10/-/10)
Pericarpium	4(111)	Arecae Pericarpium (21/-/21), Zanthoxyli Pericarpium (13/-/13) Citri Unshius Pericarpium (50/22/28), Citrii Unshius Pericarpium Immaturus (27/-/27)
Stems & Woods	10(179)	Akebiae Caulis (19/19/-), Sappan Lignum (28/-/28) Lonicerae Folium et Caulis (13/2/11), Gleditsiae Spina (7/-/7) Cinnamomi Ramulus (40/-/40), Spatholobi Caulis (9/-/9) Visci Herba (15/2/13), Mori Ramulus (8/8/-) Uncariae Ramulus et Uncus (18/-/18), Bambusae Caulis In Taeniam (22/11/11)
Leaves	6(54)	Eriobotryae Folium (7/-/7), Sennae Folium (10/-/10) Perillae Folium (16/3/13), Thujae Orientalis Folium (7/6/1) Artemisiae Argyi Folium (9/6/3), Mori Folium (5/5/-)
Cryptogams	3(106)	Poria Sclerotium (78/6/72), Polyporus (22/-/22) Massa Medicata Fermentata (6/3/3)
Semens	25(417)	Euryales Semen (9/-/9), Pharbitidis Semen (18/-/18) Cassiae Semen (12/5/7), Trichosanthis Semen (23/1/22) Raphani Semen (29/-/29), Persicae Semen (34/-/34) Thujae Semen (12/-/12), Dolichoris Semen (8/-/8) Arecae Semen (26/-/26), Zizyphi Semen (9/-/9) Nelumbinis Semen (32/-/32), Myristicae Semen (14/-/14) Coicis Semen (28/22/6), Plantaginis Semen (31/-/31) Alpiniae Katsumadaii Semen (15/-/15), Armeniacae Semen (29/-/29) Sinapis Semen (13/-/13), Castanae Semen (11/11/-) Allii Tuberosi Semen (6/-/6), Benincasae Semen (5/-/5) Glycine Semen Preparatum (8/1/7), Cannabis Semen (16/-/16) Pruni Nakaii Semen (9/-/9), Drabae Semen (7/-/7) Cuscutae Semen (13/-/13)
Whole herbs	20(226)	Pogostemonis Herba (11/-/11), Ephedrae Herba (51/-/51) Menthae Herba (24/16/8), Cynomorii Herba (11/-/11) Epimedii Herba (12/-/12), Leonuri Herba (8/7/1) Lycopi Herba (10/5/5), Geranii Herba (5/3/2) Agastachis Herba (18/4/4), Dianthi Herba (5/1/4) Cirsii Herba (3/-/3), Chelidonii Herba (8/8/-) Spirodela Herba (6/2/4), Dendrobii Herba (17/-/17) Houttuyniae Herba (7/4/3), Melandrii Herba (3/3/-) Cistanchis Herba (7/-/7), Artemisiae Capillaris Herba (7/7/-) Taraxaci Herba (6/3/3), Artemisiae Iwayomogii Herba (7/6/1)

Table 1. (Continued)

Medicinal Parts Used	N(n) ¹⁾	Herbal medicines
Tree barks & Root barks	12(323)	Eucommiae Cortex (7/3/4), Moutan Cortex (45/-/45) Mori Cortex (33/6/27), Acanthopanax Cortex (34/8/26) Cinnamomi Cortex (44/-/44), Lycii Cortex (22/-/22) Kalopanax Cortex (22/1/21), Phellodendri Cortex (28/1/27) Magnoliae Cortex (53/-/53), Ulmi Cortex (25/10/15) Albiziae Cortex (5/2/3), Betulae Cortex (5/-/5)
Flowers	11(163)	Sophorae Flos (7/-/7), Lonicerae Flos (11/-/11) Syzygii Flos (17/-/17), Prunellae Spika (9/-/9) Schizonepetae Spika (23/-/23), Carthami Flos (31/-/31) Puerariae Flos (6/-/6), Chrysanthemi Flos (17/-/17) Magnoliae Flos (30/-/30), Maydis Stigma (5/-/5) Typhae Pollen (7/-/7)
Radix & Rhizoma	82(2054)	Puerariae Radix (39/21/18), Glycyrrhizae Radix et Rhizoma (64/1/63) Osterici Radix (25/19/6), Curcumae Longae Rhizoma (15/-/15) Zingiberis Rhizoma (18/4/14), Alpiniae Officinarum Rhizoma (15/-/15) Sophorae Radix (19/2/17), Drynariae Rhizoma (16/-/16) Trichosanthis Radix (25/11/14), Cibotii Rhizoma (12/-/12) Platycodonis Radix (39/14/25), Salviae Miltiorrhizae Radix (26/-/26) Angelicae Gigantis Radix (34/28/6), Codonopsis Pilosulae Radix (37/-/37) Rhei Radix et Rhizoma (14/-/14), Araliae Continentalis Radix (28/28/-) Liriodendri Radix (60/16/44), Imperatae Rhizoma (10/-/10) Pinelliae Tuber (11/-/11), Sinomeni Caulis et Rhizoma (17/-/17) Saposhnikoviae Radix (26/3/23), Angelicae Dahuricae Radix (48/17/31) Atractylodis Rhizoma Alba (55/2/53), Aconiti Lateralis Radix Preparata (26/2/24) Dioscoreae Rhizoma (40/14/26), Sparganii Rhizoma (18/-/18) Asiasari Radix et Rhizoma (22/-/22), Rehmanniae Radix Preparata (70/13/57) Cimicifugae Rhizoma (27/-/27), Bupleuri Radix (47/3/44) Curcumae Rhizoma (25/-/25), Linderae Radix (34/-/34) Gentianae scabrae Radix et Rhizoma (9/-/9), Achyranthis Radix (47/7/40) Curcumae Radix (5/-/5), Polygalae Radix (30/-/30) Ginseng Radix (10/10/-), Lithospermi Radix (11/-/11) Asteris Radix (14/-/14), Paeoniae Radix (75/21/54) Fritillariae Thunbergii Bulbus (27/-/27), Anemarrhenae Rhizoma (30/-/30) Rehmanniae Radix (25/-/25), Atractylodis Rhizoma (26/-/26) Cnidii Rhizoma (55/19/36), Arisaematis Rhizoma (7/-/7) Gastrodiae Rhizoma (21/-/21), Asparagi Tuber (36/-/36) Alismatis Rhizoma (40/13/27), Polygoni multiflori Radix (16/-/16) Glehniae Radix (29/1/28), Cyperi Rhizoma (59/23/36) Scrophulariae Radix (33/8/25), Corydalis Tuber (32/-/32) Scutellariae Radix (46/2/44), Astragali Radix (57/19/38) Coptidis Rhizoma (36/-/36), Polygonati Rhizoma (19/8/11) Angelicae Tenuissimae Radix (21/11/10), Phragmitis Rhizoma (9/-/9) Aucklandiae Radix (37/-/37), Ampelopsis Radix (5/-/5) Stemona Radix (5/-/5), Cynanchi Wilfordii Radix (9/9/-) Lilii Bulbus (4/-/4), Belamcandae Rhizoma (6/-/6) Adenophorae Radix (10/1/9), Acori Gramineri Rhizoma (36/4/32) Dipsaci Radix (36/-/36), Polygoni Multiflori Caulis (5/-/5) Peucedani Radix (10/10/-), Clematidis Radix (16/-/16) Gypsophylae Radix (5/-/5), Angelica acutiloba (25/10/15) Angelicae Decursivae Radix (3/-/3), Remotiflori Radix (5/-/5) Rhei Undulatai Rhizoma (8/-/8), Sanguisorbae Radix (10/-/10) Gentianae Macrophyllae Radix (12/-/12), Smilacis Rhizoma (5/3/2) Patriniae Radix (7/-/7), Polygoni Cuspidati Radix (8/-/8)
Total	209 (4333) ¹⁾	4333/703/3630 ²⁾

¹⁾Number of items (Total number of samples)²⁾Total number of samples/No of domestics/No of imports

석에 사용하였다. 시료는 식품의약품안전평가원의 한약(생약) 공정서의 기원 및 성상연구 보고서 및 한약재감별도감에 명시된 한약재 약용부위에 따라 Table 1 과 같이 분류하였다.^{14,15}

2.1.2. 시약 및 기기

분석에 사용된 모든 시약은 특급에 준하는 시약을 구입하여 사용하였고, 증류수는 초순수제조장치(Milli-Q EQ 7000 with RiOs essential 5, Merck, Darmstadt, Germany)를 이용하여 18.2 MΩ 수준으로 정제된 증류수를 사용하였으며, 시료의 산 분해를 위해 질산(Wako Pure Coporation, Osaka, Japan)을 사용하였다. 실험에 사용된 모든 용기는 폴리에틸렌 및 폴리프로필렌 재질을 사용하였으며, microwave용 express vessel은 5% 질산 용액에 24시간 담근 후 초순수 증류수로 세척하였다. 시료 분해 후 5A 여과지(Avantec, Hyundai micro Co, Seoul, Korea)를 사용하여 여과하였다.

납, 카드뮴, 비소는 혼합 표준용액인 Multi-element standard for ICP/MS (10 µg/mL, Agilent, Santa Clara, CA, USA)를 사용하였고, 수은 표준품은 IRMM (Institute for Reference Materials and Measurements, geel, Belgium)에서 구입한 인증표준물질(certified reference material, CRM)인 BCR[®]-277R을 사용하였다. 회수율 검증을 위하여 미국국립표준연구원의 인증표준물질(1570a : Spinach Leaves, National Institute of Standard & Technology)과 한국표준과학연구원의 쌀 인증표준물질(KRISS CRM 108-10-011, 108-01-004)을 사용하였다.

Table 2. Operating conditions and parameters for ICP-MS and mercury analyzer

Instrument	Parameter	Operating conditions
ICP-MS	RF power	1,550 W
	Ar gas flow	
	Plasma gas flow	15.0 L/min
	Nebulizer gas flow	1.03 L/min
	Auxillary gas flow	0.90 L/min
	He gas flow	4.5 ml/min
	Analytical elements	⁷⁵ As, ¹¹¹ Cd, ²⁰⁸ Pb
Mercury analyzer	Decomposition temp.	650 °C
	Decomposition time	130 °C
	Purse time	60 sec
	Amalgam. time	12 sec
	Record time	30 sec

납, 카드뮴 및 비소의 측정은 Microwave Digestion System (MARS 5 Version 194A01, CEM, North Carolina, USA)과 Octapole Reaction System (ORS)이 부착된 유도 결합플라즈마질량분석기(ICP-MS, Thermo Scientific iCAP RQ, Bremen, Germany)를 사용하였으며, 수은의 측정은 자동시료주입기가 부착된 수은분석기(Mercury analyzer, DMA 80 evo, Mileston, Switzerland)를 사용하였으며 기기조건은 Table 2와 같다.

2.2. 실험 방법

2.2.1. 시험법 유효성 검증

중금속은 대한민국약전 일반 시험법 30. 생약시험법 나. 중금속 시험법에 따라 분석하였다.¹⁶ 본 실험의 유효성을 검증하기 위하여 식품의약품안전평가원의 의약품 등 시험방법 밸리데이션 가이드라인과 CODEX CAC/GL-71 가이드라인에 따라 직선성(linearity), 검출 한계(limit of detection, LOD), 정량한계(limit of quantification, LOQ), 정확성(accuracy) 및 정밀성(precision)을 측정하였다.^{17,18} 직선성은 납, 카드뮴, 비소는 표준 용액의 농도가 0.5, 1.0, 2.5, 5.0, 10, 25 및 50 µg/kg, 수은은 0.5, 1.0, 2.0 및 5.0 µg/kg이 되도록 조제하여, ICP-MS와 수은분석기로 분석한 결과를 검량선으로 나타내었다. 정확성은 인증표준물질을 시료와 같은 방법으로 전처리 과정을 거친 후 회수율을 측정하여 구하였으며, 정밀성은 LOD, LOQ를 3번 반복한 결과를 이용하여 변이계수(Coefficient of Variation, C.V., %)을 구하여 나타내었다.

2.2.2. 위해성 평가

한약재 섭취 시 중금속에 대한 안전성을 평가하기 위해 식품의약품안전평가원의 인체적용제품 중 중금속 통합위해성평가 보고서(2020) 및 한약(생약) 안전관리를 위한 시험법 개선 연구 보고서(2021)를 참고하여 한약재의 중금속 1일 인체노출량을 식 (1)과 같이 산출하고,^{19,20} 각 중금속의 특성을 반영하여 위해도 평가를 실시하였다. 한약재의 일일복용량은 식품의약품안전평가원에서 발행한 한약(생약)의 기준 미설정 잔류농약 적부 판정 해설서를 참고하였으며,²¹ 개별 생약의 일일복용량이 제시되지 않은 경우에는 기타생약으로 계산하였다. 평균체중은 통계청 자료를 참고하여 우리나라 성인 평균체중인 66.55 kg을 사용하였다.²² 그 외 노출기간은 평균기대수명인 83.6년, 노출빈도는 60일로 가정하여 인체노출량(human exposure)을 계산하였다.^{23,24}

$$\text{ADD } (\mu\text{g/kg b.w./day}) = \frac{C \times \text{DD} \times \text{ET} \times \text{EF}}{\text{BW} \times \text{AT} \times \text{CF}} \quad (1)$$

ADD (Average daily dose) : 일일평균노출량

[ADD : Dose rate averaged over a pathway-specific period exposure expressed as a daily dose on a per-unit-body-weight basis]

C (Concentration of heavy metal) : 시료의 중금속 농도($\mu\text{g/kg}$)

DD (Daily Dose) : 일일복용량(g/day)

ET (Exposure Time); 노출기간(year)

EF (Exposure Frequency); 노출빈도(day/year)

BW (Body Weight) : 평균체중(kg)

AT (Averaging Time) : 평균기대수명(year)

CF (Conversion Factor) : 단위환산인자(day/year)

카드뮴, 비소 및 수은은 월간섭취한계량(Tolerable Monthly Intake, TMI), 일일섭취한계량(Tolerable Daily Intake, TDI) 및 주간섭취한계량(Tolerable Weekly Intake, TWI)의 개념을 적용하여 인체노출안전기준(Health Based Guidance Value, HBGV)을 적용하며, 이 경우 위해지수(Hazard index, HI, 식 (2))는 평가 대상 물질의 인체노출안전기준 대비 평가 대상 물질의 일일노출량으로 계산하여 1이하(또는 100% 이하)일 경우 안전하다고 판단한다.¹⁹

$$\text{HI (Hazard Index)} = \frac{\text{ADD}(\mu\text{g/kg b.w./day})}{\text{HBGV}(\mu\text{g/kg b.w./day})} \times 100 \quad (2)$$

납의 경우, 역치에 대한 근거가 부족하여 인체노출 안전기준을 철회하고,²⁵ 노출안전역(Margin of Exposure, MOE, 식 (3))을 이용하여 위해여부를 평가한다.¹⁹ 이

를 위해 노출안전역 방법으로 위해수준을 판단하기 위해 독성기준값(Reference point)으로 벤치마크 용량(Benchmark Dose Lower Confidence Limit) (BMDL₁₀)을 사용하고, 이 값을 일일평균노출량(ADD)으로 나눈 값을 노출안전역으로 산출하였다. 독성기준값 BMDL₁₀은 식약처에서 제시한 성인 신장기능 영향 최종독성 값에 해당하는 0.63 $\mu\text{g/kg b.w./day}$ 을 적용하였으며,²⁶ 이를 이용하여 MOE 값이 1 이상이면 위해할 가능성이 낮은 것으로 평가할 수 있다.

$$\text{MOE} = \frac{\text{BMDL}_{10}}{\text{ADD}} \quad (3)$$

BMDL₁₀ (Benchmark Dose Lower Confidence Limit) : Reference point ($\mu\text{g/kg b.w./day}$)

ADD (Average Daily Dose) : Human exposure ($\mu\text{g/kg b.w./day}$)

2.2.3. 통계분석

모든 분석은 3회 이상 반복 측정하였고, 분석 결과는 SPSS 24.0 (Statistical Package for the Social Sciences, IBM SPSS Inc., Chicago, IL, USA)를 사용하여 시료의 평균, 표준편차 및 범위를 계산하였다. 원산지 및 약용부위 간의 유의성은 독립표본 T-Test, ANOVA-test를 사용하여 분석하였으며, 사후검정으로는 Duncan's multiple range test ($p < 0.05$)를 실시하였다.

3. 결과 및 토의

3.1. 회수율 검정

납, 카드뮴 및 비소의 검량선은 0.5~50 $\mu\text{g/kg}$ 의 농

Table 3. Elemental quantities by ICP-MS and mercury analyzer for certified reference material

Element	Certified (mg/kg)	Measured (mg/kg)	Recovery (%)	C.V. ¹⁾ (%)	LOD ²⁾ ($\mu\text{g/kg}$)	LOQ ³⁾ ($\mu\text{g/kg}$)	Linearity (R ²)
	Mean ⁴⁾ \pm SD	Mean \pm SD					
Pb ⁵⁾	0.0049 \pm 0.0012	0.0047 \pm 0.0001	95.1	3.11	0.0010	0.0033	0.9997
Cd ⁵⁾	0.3592 \pm 0.0067	0.3295 \pm 0.0039	91.7	1.21	0.0002	0.0006	0.9999
As ⁶⁾	0.068 \pm 0.012	0.066 \pm 0.004	96.9	6.69	0.0030	0.0092	0.9998
Hg ⁷⁾	0.128 \pm 0.017	0.126 \pm 0.002	99.6	1.23	0.0007	0.0019	1.0000

¹⁾Coefficient of variation = (standard deviation/mean value)

²⁾LOD = 3.3 \times (σ/S), ³⁾LOQ = 10 \times (σ/S)

σ : standard deviation of the response, S: slop of the calibration curve

⁴⁾Mean values obtained from three measurements

⁵⁾KRISS CRM 108-10-004

⁶⁾NIST CRM 1570a

⁷⁾IRMM CRM BCR[®]-277R

도에서 0.999 이상의 상관계수(R^2)값을 나타내었고, 수은은 0.5~5 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 의 농도에서 1.000의 상관계수(R^2)로 양호한 직선성을 나타내었다. LOD와 LOQ는 각각 $3.3 \times (\sigma/S)$ 와 $10 \times (\sigma/S)$ 계산식을 이용하여 측정하였고, σ 는 회귀선(regression line)에서 절편의 표준편차이며 S는 검량선 기울기의 평균값을 나타내었다. 납, 카드뮴, 비소, 수은의 검출한계는 각각 0.0010, 0.0002, 0.0030, 0.0007 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 이었으며, 정량한계는 각각 0.0032, 0.0006, 0.0092, 0.0019 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 이었다.

회수율은 인증표준물질을 시료와 동일한 조건으로 3회 반복 시험한 결과 평균 회수율(%)은 납은 95.1, 카드뮴은 91.7, 비소는 96.9, 수은은 99.6%이었다. 변이계수(C.V.)는 3.11, 1.21, 6.69, 1.23%로 측정되었다(Table 3). 변이계수가 15% 이하일 때 데이터에 대한 재현성이 양호한 것으로 보고되고 있으므로,²⁷ 본 연

구에서 ICP-MS 및 수은분석기에 의한 중금속의 LOD, LOQ의 재현성은 양호한 것으로 판단된다. 또한 중금속의 회수율은 91.7~99.6% 범위로 나타났으며, 이는 CODEX CAC 가이드라인에서 권장하는 70~110% 범위 내에 있으므로 중금속의 회수율은 양호한 것으로 판단된다.¹⁸

3.2. 중금속 함량

서울시 유통 한약재의 약용부위에 따른 개별중금속 함량은 Table 4, 국산과 수입 한약재의 비교는 Table 5에 나타내었다. 납은 잔류성이 높은 중금속으로 여러 환경에 존재하고 있다고 보이며 특히 토양은 한약재를 재배하는 장소이므로 이와 밀접한 관계를 가진다. 사용된 부위별 납의 함량(mg/kg)은 전초류 1.290, 엽류 1.228, 등목류 0.685, 피류 0.604, 화류 0.586, 근(경)

Table 4. The content of heavy metal in herbal medicines by medicinal parts used (Unit : mg/kg)

Medicinal Parts Used	N ¹⁾	Pb	Cd	As	Hg
Above ground parts					
Fructus	700	0.232 \pm 0.394 ^{2a} (ND-4.615) ³⁾	0.042 \pm 0.063 ^{ab} (ND ⁴⁾ -0.568)	0.077 \pm 0.138 ^{ab} (ND-1.157)	0.004 \pm 0.004 ^{ab5)} (ND-0.041)
Pericarpium	111	0.156 \pm 0.177 ^a (ND-1.029)	0.018 \pm 0.026 ^a (ND-0.199)	0.034 \pm 0.033 ^a (ND-0.208)	0.003 \pm 0.003 ^a (ND-0.018)
Stems & Woods	179	0.685 \pm 0.887 ^{ab} (ND-5.400)	0.116 \pm 0.142 ^d (ND-0.604)	0.071 \pm 0.092 ^{ab} (ND-0.579)	0.010 \pm 0.010 ^d (ND-0.074)
Leaves	54	1.228 \pm 2.829 ^{bc} (0.010-20.112)	0.131 \pm 0.154 ^d (ND-0.620)	0.290 \pm 0.453 ^f (ND-3.265)	0.015 \pm 0.012 ^f (ND-0.050)
Cryptogams	106	0.355 \pm 0.605 ^a (ND-2.886)	0.074 \pm 0.139 ^{bc} (ND-0.928)	0.087 \pm 0.116 ^b (ND-0.463)	0.009 \pm 0.011 ^{cd} (ND-0.083)
Semens	417	0.123 \pm 0.521 ^a (ND-8.700)	0.043 \pm 0.052 ^{ab} (ND-0.335)	0.046 \pm 0.082 ^{ab} (ND-0.980)	0.003 \pm 0.005 ^a (ND-0.070)
Whole herbs	226	1.290 \pm 10.895 ^c (ND-164.000)	0.105 \pm 0.191 ^{cd} (ND-2.096)	0.191 \pm 0.340 ^{de} (ND-3.073)	0.012 \pm 0.012 ^c (ND-0.081)
Tree barks & Root barks	323	0.604 \pm 0.805 ^a (ND-4.391)	0.100 \pm 0.111 ^{cd} (ND-0.552)	0.143 \pm 0.164 ^c (ND-1.074)	0.008 \pm 0.009 ^{bc} (ND-0.079)
Flowers	163	0.586 \pm 0.495 ^a (ND-2.679)	0.059 \pm 0.060 ^{ab} (ND-0.318)	0.212 \pm 0.264 ^c (ND-1.825)	0.007 \pm 0.006 ^b (ND-0.06)
Total	2279	0.456 \pm 3.519 (ND-164.000)	0.066 \pm 0.107 (ND-2.096)	0.104 \pm 0.193 (ND-3.265)	0.006 \pm 0.008 (ND-0.083)
Underground parts					
Radix & Rhizoma	2054	0.367 \pm 0.601 ^a (ND-6.599)	0.126 \pm 0.239 ^d (ND-8.200)	0.155 \pm 0.211 ^{cd} (ND-2.607)	0.004 \pm 0.005 ^a (ND-0.090)

¹⁾Number of samples

²⁾Mean \pm SD.

³⁾Range.

⁴⁾ND : Not Detected.

⁵⁾Each group (a to f) has statistically significant difference by Duncan's multiple range test at $p < 0.05$.

Table 5. The content of heavy metal in herbal medicines by origin (Unit : mg/kg)

Medicinal Parts Used	N ¹⁾	Pb		Cd		As		Hg	
		Domestic	Imported	Domestic	Imported	Domestic	Imported	Domestic	Imported
Above ground parts									
	326/1953	0.419 ± 1.347 ²⁾ (ND-20.112) ³⁾	0.462 ± 3.761 (ND ⁴⁾ -164.000)	0.064 ± 0.148 (ND-2.096)	0.066 ± 0.098 (ND-0.928)	0.074 ± 0.151 ⁵⁾ (ND-1.650)	0.109 ± 0.199 (ND-3.265)	0.006 ± 0.008 (ND-0.081)	0.006 ± 0.008 (ND-0.083)
Underground parts									
	377/1677	0.252 ± 0.412 ⁸⁾ (ND-4.295)	0.393 ± 0.633 (ND-6.599)	0.097 ± 0.085 ⁸⁾ (ND-0.711)	0.133 ± 0.260 (ND-8.200)	0.123 ± 0.172 ⁸⁾ (ND-2.136)	0.162 ± 0.218 (ND-2.607)	0.003 ± 0.003 ⁸⁾ (ND-0.017)	0.005 ± 0.005 (ND-0.090)
Total	703/3630	0.330 ± 0.969 (ND-20.112)	0.430 ± 2.792 (ND-164.000)	0.082 ± 0.120 ⁸⁾ (ND-2.096)	0.097 ± 0.194 (ND-8.200)	0.101 ± 0.165 ⁸⁾ (ND-2.136)	0.134 ± 0.209 (ND-3.265)	0.004 ± 0.006 ⁸⁾ (ND-0.081)	0.006 ± 0.007 (ND-0.090)

¹⁾Number of samples

²⁾Mean ± SD.

³⁾Range.

⁴⁾ND : Not Detected.

⁵⁾⁸⁾p-value shows significant differences of heavy metal contents between domestic and imported herbs (t-test, <0.05)

류 0.367, 은화식물류 0.355, 과실류 0.232, 과피류 0.156, 종자류 0.123이었다. 납은 지상부위의 전초류 및 엽류가 지하부위인 근(경)류보다 함유량이 유의적인 수준에서 높았다(ANOVA-test, $p < 0.05$). 김 등의 연구에서 유통 환제품의 중금속 함량에서 사용된 식물의 부위 중 잎을 원료로 사용한 제품이 다른 부위에 비해 유의적 수준에서 높았다고 보고하였고,²⁸ 이는 장 등, 김 등과 정 등의 보고에서도 유사하게 나타났다.²⁹⁻³¹ 납 기준을 초과한 시료는 엽류에서는 국산 측백엽과 수입 비파엽이 각각 20.112, 6.246이었고, 종자류에서는 수입 행인이 8.700이었다. 전초류 3건의 경우, 국산 현초는 11.000, 수입산 부평은 164.000, 박하는 8.579로 기준값을 초과하였다. 지하부위인 근(경)류는 납 기준을 초과한 시료가 2건으로 수입 구척과 위령선으로 각각 6.599, 5.597이었다. 국산과 수입 한약재의 비교에서는 국산은 0.330, 수입은 0.430이었으며, 지하부위만 국산은 0.252, 수입은 0.393으로 유의적인 차이가 있었다(t-test, $p < 0.05$). 납 기준을 초과한 시료는 총 8건으로 국산 2건, 수입산은 6건이었다.

카드뮴은 환경성 유해물질로, 오염지역의 오염정도를 판단하는 기준원소로 알려져 있다. 비흡연인 노출량의 90%가 식품으로 인한 노출이며, 이는 토양의 물리·화학적 형태, 재배환경, 재배법, 공급되는 농경수의 오염여부, 그리고 식품의 종류 등에 영향을 받는다.³²⁻³³ 카드뮴의 허용기준은 품목에 따라 0.3, 0.7, 1.0 mg/kg 이하로 적용되고 있다. 카드뮴의 부위별 함량(mg/kg)은 엽류 0.131, 근(경)류 0.126, 등목류 0.116, 전초류 0.105, 피류 0.100, 은화식물류 0.074, 화류 0.059, 종자류 0.043, 과실류 0.042, 과피류 0.018이었다. 카드

뮴은 엽류, 근(경)류, 등목류가 다른 부위에 비해 유의적인 수준에서 높았으며(ANOVA-test, $p < 0.05$), 이는 김 등의 보고와 비슷하였다.³⁰ 카드뮴의 기준을 초과한 시료는 총 21건으로 근(경)류 11건, 전초류 7건, 엽류 2건, 등목류 1건이었다. 근(경)류 국산은 강활과 시호에서 각각 0.470, 0.711이었고, 수입산은 백합, 위령선, 일당귀, 전호, 황정 등 다양한 품목에서 최소 0.464에서 최대 8.200으로 기준값을 초과하는 것으로 나타났다. 전초류는 국산은 왕불류행과 한인진이 각각 2.096, 0.935이었고, 수입은 대계, 부평, 음약콕이 0.444-0.656, 0.900, 0.738로 기준치를 초과하였는데, 이 중 대계는 전체건수 모두가 부적합한 것으로 나타났다. 식품의약품안전평가원의 보고서에 따르면 대계의 수집 시료 13건 중 납, 비소, 수은은 모두 기준치 이내였으나 카드뮴의 경우 10건의 시료에서 기준을 초과한 연구 결과와 유사한 결과를 보였다.²⁰ 보고서에 따르면 우리나라는 뿌리를 포함하는 전초로 대계를 사용하나 중국 공정에서는 지상부만을 사용하며, 지상부의 경우는 카드뮴이 0.3 이하의 낮은 수준이므로 동일한 국화과의 전초를 사용하는 포공영의 기준과 같이 0.7 이하로 개정을 제안하였다. 엽류는 수입 비파엽 2건이 각각 0.596, 0.620으로 기준치를 초과하였고, 등목류인 수입 곡기쟁이 0.500으로 기준치를 초과하였는데, 이 제품은 납 함량도 5.400으로 기준치인 5.0과 비슷하게 나왔다. 카드뮴의 경우 납, 비소, 수은에 비해 다양한 품목에서 기준을 초과하는 것들이 나왔다. 이는 유통한 약재의 약용부위에 따른 중금속 중 카드뮴을 초과하는 부적합 제품이 많았다는 김 등의 보고와 동일한 결과를 나타내었고,³⁰ 유통 환제품의 중금속 함량에서

있을 사용한 제품에서 유의적인 수준으로 높게 잔류하여 납과 같은 양상을 나타낸 김 등의 보고와도 비슷하였다.²⁸ 국산과 수입 한약재의 카드뮴 평균 함량은 국산이 0.082, 수입이 0.097로 유의적인 차이가 있었으며(t-test, $p < 0.05$), 기준을 초과한 시료는 국산 4건, 수입 17건이었다.

비소는 강한 독성을 가지고 있는 주요 환경오염물질로, 다양한 형태의 화합물로 환경 중에 널리 분포하는 금속물질이다. 한약재의 비소 기준은 3 mg/kg 이하이다. 비소의 부위별 평균 함량(mg/kg)은 엽류 0.290, 화류 0.212, 전초류 0.191, 근(경)류 0.155, 피류 0.143, 은화식물류 0.087, 과실류 0.077, 등목류 0.071, 종자류 0.045, 과피류 0.034이었다. 비소는 엽류, 화류, 전초류가 다른 부위에 비해 유의적 수준에서 높았으며(ANOVA-test, $p < 0.05$), 지하부위의 평균값이 지상부위보다 높았다. 한약재의 비소 기준을 초과한 시료는 없었으나 중국산 비파엽이 3.265로 기준치와 비슷하게 검출되었다. 이 시료는 납과 카드뮴 기준치를 모두 초과한 제품이었다. 국산과 수입 한약재의 비소 평균 함량은 국산 0.101, 수입 0.134로 유의적인 차이가 있었으며(t-test, $p < 0.05$), 지상과 지하부위의 평균값도 모두 차이가 있었다(t-test, $p < 0.05$).

한약재의 수은 기준은 0.2 mg/kg 이하이며, 수은의 부위별 평균 함량(mg/kg)은 엽류 0.015, 전초류 0.012, 등목류 0.010, 은화식물류 0.009, 피류 0.008, 화류 0.007, 근(경)류 0.004, 과실류 0.004, 과피류 0.003, 종자류 0.003이었다. 엽류, 전초류, 등목류가 다른 부위에 비해 유의적인 수준에서 높았으나(ANOVA-test, $p < 0.05$), 수은 기준을 초과하는 시료는 없었다. 국산과 수입 한약재의 수은 평균 함량은 국산 0.004, 수입 0.006으로 유의적인 차이가 있었으며, 지상부위만 차이가 있었다(t-test, $p < 0.05$). 수은의 평균 검출량은 납, 카드뮴, 비소의 평균 검출량보다 낮았으며 이는 정 등, 조 등, 이 등의 보고와 유사한 결과를 나타내었다.^{31,34,35} 위의 연구 결과를 토대로, 납과 카드뮴 함량이 허용치를 초과한 품목에 대해 지속적인 모니터링을 통한 관리가 요구된다. 또한, 오염경로 및 원인을 파악한 후 중금속 저감화 및 제도개선을 통해 한약재의 품질과 안전성을 확보해야 한다.

3.3. 위해도 평가

한약재 섭취로 인한 중금속은 환경 등에서 발생하는 비의도적 유해물질이다. 이에 대한 위해도 평가를 위해 본 연구에서는 국내에서 설정한 인체노출안전기

준을 우선으로 하였으며, 평균일일노출량(ADD)을 구하여 위해지수(HI)와 노출안전역(MOE)을 사용하여 위해도를 평가하였다(Tables 6-7). 또한 더 안전하게 관리하기 위해 보수적 접근방법, 즉 최대값을 적용하여 위해도를 과대평가하였다. 따라서 한약재를 최대복용량으로 복용한다고 가정하고 한약재 중 개별 중금속 평균 함량과 최대 함량에 대한 위해도를 평가하였으며, 한약재는 다양한 형태로 복용되므로 복용형태에 따른 중금속 이행률의 적용이 필요하나 이것 또한 보수적 방법으로 모두 이행된다는 조건 하에 평가하였다.

국제암연구기관(International Agency for Research on Cancer, IARC)에서는 발암성에 대해, 납은 Group 2B(사람에 대해 발암성이 의심됨), 카드뮴과 비소는 Group 1(사람에 대해 발암성 있음), 수은은 Group 3(사람에 대한 발암성 여부에 대해 분류할 수 없음)으로 분류되고 있다.³⁶⁻³⁸

국제식품첨가물위원회인 JECFA (Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives)에서는, 납에 대한 역학적 증거가 기존 인체노출안전기준인 PTWI 25 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/week보다 낮은 용량에서 관찰되어, 역학적 안전역이 존재하지 않는다고 판단하여, 이 기준값을 2010년에 철회하였다.³⁹ 이에 식약처에서는 2011년에 인체노출안전기준에 대한 재평가를 수행하였고,²⁵ 유럽식품안전청(European Food Safety Authority, EFSA)의 자료 등을 근거로, 발달신경독성 및 신장기능 영향에 대한 최종 독성값을 제시하였다.²⁶ 본 연구에서는 성인 신장기능 영향 최종독성값 BMDL₁₀에 해당하는 0.63 $\mu\text{g}/\text{kg}$ bw/day를 최종독성값으로 하여 대한 인체노출안전기준 대신 노출안전역 접근방법을 사용하여 위해도를 분석하였다. 노출안전역은 한약재를 통한 노출량을 독성이 관찰되지 않는 독성기준값과 비교하여 노출량과 독성기준값 사이의 차이를 평가하며, 이를 근거로 현재의 노출수준에 대한 안전수준을 판단한다. 납의 경우는 임상자료를 토대로 하였기 때문에 MOE의 결과값이 1 이상이면 위해할 가능성이 낮은 것으로 평가할 수 있는데,⁴⁰ 납과 같은 유전독성 발암물질은 안전한 노출 제한이 없으므로 ALARA(As Low As reasonably Achievable)원칙을 적용하여 가능한 낮은 수준으로 관리하는 노력이 필요하다. 납의 평균함량이 높고 일일섭취량이 많은 한약재일수록 인체노출량이 높게 나타났고, 이에 따라 노출안전역인 MOE 값이 낮은 결과를 나타내었다(Table 6). 국산의 경우, 약용부위별로 보면 최대값의 평균(mg/kg)은 엽류(21.01) > 등목류(21.62) > 전초류(30.09) > 과피류(49.43) > 근(경)류

Table 6. The estimated human daily exposure and MOE value of Pb for risk characterization in herbal medicines

Medicinal Parts Used	Pb (MOE) ¹⁾			
	Domestics		Imports	
	Mean	Max	Mean	Max
Fructus	184.96 ²⁾ (15.87~587.68) ³⁾	477.15 (143.45~2024.23)	81.04 (3.65~755.71)	271.40 (20.17~2576.29)
Pericarpium	247.14	49.43	166.66 (110.13~244.07)	56.15 (20.66~76.02)
Stems & Woods	45.43 (17.20~125.33)	21.62 (6.79~56.55)	91.18 (11.63~483.05)	13.42 (1.89~46.37)
Leaves	49.45 (3.72~107.17)	21.01 (0.85~48.67)	69.82 (13.56~279.66)	38.62 (3.71~157.44)
Cryptogams	1816.11 (34.85~3537.37)	610.98 (42.84~1179.12)	373.75 (33.61~378.64)	157.93 (7.41~451.65)
Semens	826.48 (246.43~1700.35)	239.99 (139.07~344.67)	422.74 (38.69~2024.23)	146.27 (2.67~674.74)
Whole Herbs	60.53 (4.03~191.63)	30.09 (1.55~134.03)	67.93 (0.68~265.68)	43.32 (0.17~265.68)
Tree barks & Root barks	182.95 (23.64~548.50)	151.91 (11.95~548.50)	59.90 (10.15~167.52)	21.16 (3.06~72.66)
Flowers	-	-	108.02 (5.11~590.40)	28.00 (1.32~115.41)
Radix & Rhizoma	136.95 (2.50~481.23)	74.38 (1.54~373.98)	99.71 (2.61~700.69)	32.66 (2.46~207.02)

¹⁾MOE : Margin of Exposure = BMDL₁₀ (benchmark dose lower confidence limit)/ADD

²⁾Mean

³⁾Range

(74.38) > 피류(151.91) > 종자류(239.99) > 과실류(477.15) > 은화식물류(610.98) 순이었으며, 수입산은 등목류(13.42) > 피류(28.00) > 화(분)류(28.00) > 근(경)류(32.66) > 엽류(38.62) > 전초류(38.62) > 과피류(56.15) > 종자류(146.27) > 은화식물류(157.93) > 과실류(271.40) 순이었다. 전반적으로, 국산에 비해 수입산의 MOE 값이 낮았다. 약용부위별로 국산과 수입 한약재를 평가한 결과, 한약재 복용으로 인한 납의 인체노출에 의한 위해 우려는 전반적으로 낮았다. 그러나 국산 엽류 중에서 측백엽 1건이 20 mg/kg으로 MOE 값이 0.85였으며, 수입산 전초류 중에서는 부평의 평균값과 최대값이 각각 41.502, 164.000 mg/kg으로 MOE 값이 0.68과 0.17로 1보다 낮았다. 그 외의 경우에는 BMDL₁₀ 0.63 µg/kg bw/day 기준으로 평가한 MOE 값은 모두 1보다 크며, 납으로 인한 유해한 영향이 발생할 가능성은 우려되지 않는다.

카드뮴, 비소, 수은의 위해성은 위해지수로 표시되며, 이 지수가 1 이상일 경우 위해하다고 판단하며 1 이하일 경우 안전하다고 판단한다. 본 연구에서는 이

값을 백분율로 표기하였으며 100% 이하인 경우 안전하다고 판단하였다. 한약재의 복용으로 인한 카드뮴 위해성은 인체노출안전기준 PTMI 25 µg/kg bw/month에 대비하여 %로 나타내었다(Table 7). 약용부위별 카드뮴 최대값의 평균의 위해도는 인체노출안전기준 대비 국산과 수입 각각 0.1348~1.7357%, 0.3012~1.5651%로 매우 낮게 나타났다. 그러나 수입 중 근경류의 백합은 카드뮴의 최대 오염도가 1.200 mg/kg이었고, 일일복용량이 37.5 g으로 높은 편이므로 위해도가 13.34%이었으며, 전호의 경우 최대 오염도가 8.200 mg/kg, 일일복용량이 11 g으로 위해도는 26.74%이었다. 전호는 전체건수가 3건으로 적었지만 모두 카드뮴 기준 0.3 mg/kg을 초과했으며, 식약처 보고서의 연구 결과에서도 카드뮴 기준 개선 검토 필요 품목으로 나타났다.²⁰⁾

비소의 인체노출안전기준은 식품의약품안전처의 식품 중 유해오염물질 위해평가 실무 표준 매뉴얼과 식품 중 비소 위해평가 보고서에 따라 WHO에서 참고값으로 제시하고 있는 총 비소 최대일일허용량(MADL, Maximum Allowable Daily Body Load) 50 µg/kg bw/

Table 7. The hazard index (%) of heavy metals in herbal medicines by medicinal parts

Medicinal Parts Used	Hazard Index (%) ¹⁾											
	Domestics						Imports					
	Cd		As		Hg		Cd		As		Hg	
	Mean	Max	Mean	Max	Mean	Max	Mean	Max	Mean	Max	Mean	Max
Fructus	0.1971 ²⁾	0.3644	0.0014	0.0083	0.0135	0.0366	0.1912	0.4641	0.0063	0.0239	0.0219	0.0800
	(0.0080~0.6225) ³⁾	(0.0080~0.7718)	(0.0006~0.0030)	(0.0006~0.0425)	(0.0065~0.0294)	(0.0084~0.0785)	(0.0027~0.9912)	(0.0093~1.8520)	(0.0001~0.0566)	(0.0004~0.1073)	(0.0063~0.0514)	(0.0147~0.2103)
Pericarpium	0.0213	0.2170	0.0008	0.0030	0.0168	0.0841	0.0639	0.3012	0.0020	0.0078	0.0167	0.0622
	(0.0228~0.1206)	(0.0619~0.7078)	(0.0015~0.0026)	(0.0031~0.0119)	(0.0140~0.0206)	(0.0280~0.0925)						
Stems and Woods	0.4543	0.8707	0.0061	0.0117	0.0526	0.0920	0.5582	1.4497	0.0086	0.0235	0.0831	0.2142
	(0.0142~1.2227)	(0.0285~1.6451)	(0.0009~0.0124)	(0.0028~0.0174)	(0.0140~0.1285)	(0.0360~0.1519)	(0.0228~1.2116)	(0.2576~3.7051)	(0.0009~0.0278)	(0.0061~0.0489)	(0.0051~0.2337)	(0.0206~0.5187)
Leaves	0.4009	0.6239	0.0071	0.0129	0.0909	0.1402	0.5733	0.9293	0.0182	0.0528	0.0555	0.1109
	(0.1156~0.8640)	(0.2045~1.2846)	(0.0025~0.01473)	(0.0042~0.0233)	(0.0327~0.1612)	(0.0514~0.2103)	(0.0246~1.3629)	(0.1334~2.0215)	(0.0057~0.0349)	(0.0081~0.1774)	(ND~0.1234)	(ND~0.2570)
Cryptogams	0.0590	0.1348	0.0011	0.0022	0.0304	0.0500	0.2385	0.7259	0.0042	0.0188	0.0375	0.1305
	(0.0447~0.0734)	(0.1341~0.1354)	(0.0004~0.0018)	(0.0011~0.0034)	(0.0073~0.0534)	(0.0219~0.0781)	(0.0753~0.5398)	(0.1035~1.6509)	(0.0007~0.0077)	(0.0013~0.0414)	(0.0036~0.0594)	(0.0067~0.2338)
Semens	0.1152	0.1898	0.0005	0.0013	0.0050	0.0191	0.1437	0.4398	0.0044	0.0148	0.0215	0.0765
	(ND~0.3735)	(ND~0.5913)	(ND~0.0010)	(ND~0.0041)	(ND~0.0070)	(ND~0.0393)	(0.0124~0.5913)	(0.0249~1.8472)	(0.0003~0.0207)	(0.0010~0.0726)	(ND~0.0561)	(0.0140~0.1963)
Whole Herbs	0.8407	1.7357	0.0174	0.0279	0.0850	0.1696	0.6448	1.1232	0.0208	0.0326	0.0908	0.1396
	(0.0302~2.6508)	(0.0605~6.8340)	(0.0024~0.0630)	(0.0040~0.0757)	(0.0224~0.2383)	(0.0379~0.5678)	(0.0445~2.4809)	(0.0934~3.2812)	(0.0024~0.1001)	(0.0024~0.1366)	(0.0051~0.3855)	(0.0154~0.6426)
Tree barks & Root barks	0.2552	0.4054	0.0053	0.0173	0.0225	0.0361	0.3842	0.7448	0.0104	0.0311	0.0530	0.1607
	(0.0578~0.7959)	(0.0578~0.9358)	(0.0005~0.0175)	(0.0005~0.0785)	(ND~0.0421)	(ND~0.0622)	(0.1174~0.8314)	(0.1627~1.6332)	(0.0011~0.0402)	(0.0025~0.0974)	(0.0168~0.1865)	(0.0421~0.7014)
Flowers	-	-	-	-	-	-	0.4263	1.1199	0.0175	0.0472	0.0530	0.1607
							(0.0107~2.3787)	(0.0534~6.4469)	(0.0011~0.0474)	(0.0034~0.1408)	(0.0168~0.1865)	(0.0421~0.7014)
Radix & Rhizoma	0.4218	0.8021	0.0150	0.0399	0.0216	0.0576	0.7192	1.5651	0.0130	0.0378	0.0361	0.1040
	(0.0391~1.4981)	(0.0391~2.6469)	(0.0012~0.1820)	(0.0012~0.6240)	(0.0051~0.0467)	(0.0051~0.1963)	(0.0293~10.5249)	(0.1200~26.7361)	(0.0012~0.0609)	(0.0019~0.3864)	(ND~0.2243)	(ND~0.4626)

¹⁾Hazard Index (%) : ADD (µg/kg b.w./day)/HBGV (µg/kg b.w./day) × 100

²⁾Mean

³⁾Range

day를 적용하여,⁴¹⁻⁴³ 한약재 복용으로 인한 비소의 위해도를 인체노출안전기준 대비 %로 나타내었다(Table 7). 약용부위별 비소 최대값의 평균의 위해도는 인체노출안전기준 대비 국산과 수입 각각 0.0013~0.0399%, 0.0078~0.0528%로 매우 낮게 나타나 안전한 것으로 판단된다.

수은의 인체노출안전기준은 식품의약품안전처의 수은 통합위해평가 보고서의 평가 결과에 따라 주간섭취한계량 3.7 µg/kg bw/week를 제시하였으므로,⁴⁴ 이 값을 적용하여 한약재 복용으로 인한 수은의 위해도를 나타내었다(Table 7). 약용부위별 수은 최대값의 평균의 위해도는 인체노출안전기준 대비 국산과 수입 각각 0.0191~0.1696%, 0.0622~0.2142%로 매우 낮은 수준으로 평가되었다.

4. 결 론

2019년부터 2021년까지 서울지역에서 유통되는 209품목의 한약재 4333건을 대상으로 납, 카드뮴, 비소, 수은과 같은 유해중금속의 함량을 조사하고, 약용부위와 원산지에 따라 구분하여 위해성을 평가하였다. 납, 카드뮴, 비소와 같은 중금속의 경우, Microwave Digestion System을 사용하여 질산 분해 후 ICP-MS를 사용하여 측정하였고, 수은은 시료를 직접 수은분석기에 주입하여 측정하였다. 납의 부위별 평균함량은 0.123~1.290 mg/kg으로 지상부위인 전초류와 엽류에서 높게 나타났다. 모니터링 결과, 엽류의 비과엽과 측백엽, 종자류의 행인, 전초류의 현초, 부평, 박하, 근(경)류의 구척과 위령선이 각각 1건으로 총 8건에서 납 기준을 초과하였다. 카드뮴의 부위별 평균함량은

0.018~0.131 mg/kg로 엽류, 근(경)류, 등목류가 높게 나타났으며(ANOVA-test, $p < 0.05$), 다양한 품목에서 카드뮴 기준치를 초과하였다. 등목류의 곡기생, 엽류의 비파엽, 전초류의 대계, 부평, 왕불류행, 음양곽, 한인진, 근(경)류의 강활, 백합, 시호, 위령선, 일당귀, 전호, 황정 등 다양한 품목에서 기준치를 초과하였으며, 이 중 백합, 비파엽, 위령선은 각각 2건, 대계와 전호는 3건씩이었다. 또한 부평, 비파엽, 위령선 1건씩은 납과 카드뮴 항목 모두 기준치를 초과하였으며, 강활, 시호, 왕불류행, 한인진 제외한 나머지는 모두 수입이었다. 비소의 약용부위별 평균함량은 0.034~0.290 mg/kg이었고 엽류, 화류, 전초류가 유의적인 수준에서 높았지만, 기준을 초과한 시료는 없었다. 수은의 약용부위별 평균 함량은 0.003~0.015 mg/kg로 엽류, 전초류, 등목류가 유의적인 수준에서 높았으나, 비소와 같이 기준을 초과한 시료는 없었다. 원산지간 비교에서 카드뮴, 비소, 수은 함량은 국산보다 수입산이 높았다(t -test, $p < 0.05$).

한약재 섭취로 인한 중금속에 대한 위해도는 품목별 평균 및 최대함량을 사용하고, 한약의 복용량을 일일 최대복용량으로 계산하여 보수적인 접근방법으로 위해도를 과대평가하였다. 납은 노출안전역(MOE) 접근 방법을 사용하였고, 대부분의 시료에서 MOE 값이 1 이상으로 인체노출에 의한 우려는 낮았지만, 국산 측백엽과 수입 부평이 각각 0.85, 0.17로 1 보다 낮았다. 카드뮴, 비소, 수은의 위해성 평가는 국내에서 설정한 각각의 인체노출안전기준을 이용하여 위해지수(HI)로 나타내었다. 비소와 수은의 약용부위별 최대값 평균의 위해도는 각각 0.0013~0.0528%, 0.0191~0.2142%로 매우 낮게 나타나 안전한 것으로 평가되었다. 카드뮴의 약용부위별 최대값 평균의 위해도는 0.1348~1.7357%로 대부분 안전한 수준으로 평가되었으나 수입 백합과 전호는 각각 13.34%, 26.74%의 위해도를 보였다. 이는 카드뮴 오염도가 높고 일일복용량이 높을수록 위해도가 높기 평가되는데, 이처럼 중금속의 허용기준을 초과하였어도, 위해도 평가 결과에는 인체노출안전기준을 근거로 평가하였을 때 각각의 중금속 위해도를 모두 더하여도 100% 이하로 평가되어 한약재 복용으로 인한 위해성은 안전한 수준으로 평가되었다. 기준치 이상으로 측정된 품목들에 대해 기준개선을 위한 지속적인 모니터링이 필요한 것으로 보이며, 현재 유통되는 한약재 중 수입산이 국산보다 많은데, 수입한약재의 재배, 제조, 유통과정에서 오염 물질이 혼입될 가능성이 있으므로 수입한약재의 지속적인 품질

관리가 필요하다. 또한 중금속 오염도는 환경오염 등 재배환경의 변화 등에 따라 변동 가능성이 있으므로 유통되는 한약재의 품질관리와 한약재 복용 시 중금속의 위해수준을 확인하기 위해 지속적인 모니터링이 필요하다. 본 연구는 유통되는 한약재의 중금속 오염도를 조사하고 위해도를 결정하여 안전성을 평가하였고, 앞으로의 기준개선을 검토하는데 필요한 근거자료로 활용될 수 있으며, 이를 통해 더 안전한 한약재가 유통되도록 기여할 수 있을 것으로 생각된다.

References

1. B. H. Kang, Y. K. Choi, C. Y. Jeon, and S. B. Yang, *J. Int. Korean Med.*, **41**(3), 424-433 (2020). <https://doi.org/10.22246/jikm.2020.41.3.424>
2. K. E. Lee, S. H. Jeong, M. J. Jeong, Y. M. Choi, M. D. Song, and I. S. Jang, *J. Int. Korean Med.*, **42**(1), 53-66 (2021). <https://doi.org/10.22246/jikm.2021.42.1.53>
3. S. M. Choi, H. J. Chung, Y. S. Yoon, M. Y. Lee, H. S. Choi, and H. J. Sung, *J. Korean Oriental Med.*, **21**, 99-112 (2000). <https://scienceon.kisti.re.kr/commons/util/originalView.do?cn=JAKO200011923037420&dbt=JAKO&koi=KISTII.1003%2FJNL.JAKO200011923037420>
4. The Ministry of Health and Welfare. Notification No.1995-1944, 326 (1995), Republic of Korea.
5. Korea Food and Drug Administration. Notification No.2005-2062, 1-2 (2005), Republic of Korea.
6. Korea Food and Drug Administration. Notification No.2011-204, 3-5(2011), Republic of Korea.
7. Y. J. Hong, J. E. Kwak, W. H. Park, Y. S. Hwang, E. J. Kim, A. S. Park, Y. Shin, E. J. Han, J. M. Lee, B. S. Kim, and B. H. Choi, *Report of Seoul Institute of Health and Environment, Korea*, **42**, 286-298 (2006).
8. J. E. Kwak, Y. Shin, C. H. Han, Y. S. Hwang, A. S. Park, D. G. Kim, E. J. Han, S. J. Jung, B. S. Kim, B. H. Choi, and M.Y. Kim, *Report of Seoul Institute of Health and Environment, Korea*, **43**, 129-140 (2007).
9. E. J. Han, D. G. Kim, C. H. Han, O. H. Kim, J. E. Kwak, S. J. Jung, B. S. Kim, and B. H. Choi, *Report of Seoul Institute of Health and Environment, Korea*, **44**, 126-139 (2008).
10. C. S. Seo, D. S. Huang, J. K. Lee, H. K. Ha, J. M. Chun, Y. R. Um, S. Jang, and H. K. Shin, *Kor. J. Herbology* **24**(2), 13-20 (2009). <https://koreascience.kr/article/>

- JAKO200923753740180.pdf
11. M. K. Park, *J. Environ. Sci.*, **16**(2), 241-245 (2007). <https://kmbase.medic.or.kr/Main.aspx?menu=01&d=KMBASE&m=VIEW&i=1024520070160020241>
 12. S. D. Lee, M. D. Kim, and K. S. Park, *Kor. J. Oriental Preventive Medical Society*, **2**, 209-229 (1998). <http://www.koreascience.or.kr/article/JAKO199804637420684.pdf>
 13. K. D. Kim, H. M. Park, Y. C. Seo, and S. D. Lee, *Kor. J. Oriental Preventive Medical Society*, **16**, 167-183 (2012). <http://www.koreascience.or.kr/article/JAKO201208138129179.pdf>
 14. Ministry of Food and Drug Safety. Origin and description study for herbal material registered in official compendium. Cheongju, Korea (2017).
 15. Z. Zhongzhen and C. Hubiao, Chinese medicinal identification, 59-385, Korean Studies Information Co., Ltd., Paju, Gyeonggido, Korea (2018).
 16. The Korean Pharmacopoeia, Eleventh edition (KP XI), General tests, process and apparatus. Test for Herbal Drugs, 2153-2154 (2004).
 17. National Institute of Food and Drug Safety, Evaluation Guidelines for validation of test methods for pharmaceuticals. Cheongju, Korea (2015).
 18. CODEX Alimentarius Commission, Guidelines for the design and implementation of national regulatory food safety assurance programme associated with the use of veterinary drugs in food producing animals, CAC/GL-71, Rome, Italy (2009).
 19. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation, Study on the integrated risk assessment of heavy metals to human health. Cheongju, Korea (2020).
 20. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation, A study on method improvement for the safety control of herbal medicine. Cheongju, Korea (2021).
 21. Ministry of Food and Drug Safety, Explanation on the determination of residual pesticides not established criteria for medicinal herb. Cheongju, Korea (2018).
 22. Kosis Korean statistical information service, https://kosis.kr/statHtml/statHtml.do?orgId=350&tblId=DT_35007_N132&conn_path=I2 (2022).
 23. Kosis Korean statistical information service, https://kosis.kr/statHtml/statHtml.do?orgId=101&tblId=DT_1B41&conn_path=I2 (2022).
 24. Food and Drug Administration, Research on Intake of Chinese Medicine by Korean. Cheongju, Korea (2006).
 25. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation, Study for Establishment of Health based Guidance Value on Hazardous Material. Cheongju, Korea (2011).
 26. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation, Study for Development of Risk Assessment Guideline and Establishment of Health based Guidance Value. Cheongju, Korea (2010).
 27. C. Roger, *J. Chromatogr. B*, **689**, 175-180 (1997). [https://doi.org/10.1016/S0378-4347\(96\)00297-6](https://doi.org/10.1016/S0378-4347(96)00297-6)
 28. S. D. Kim, S. O. Jung, B. S. Kim, E. S. Yun, M. S. Chang, Y. A. Park, Y. C. Lee, Y. Z. Chae, and M. Y. Kim, *J. Korean Soc. Food Nutr.*, **39**, 1038-1048 (2010). <https://doi.org/10.3746/jkfn.2010.39.7.1038>
 29. S. Jang, T. H. Kim, A. R. Lee, A. Y. K. Choi, and H. K. Kim, *Korean J. Medicinal Crop Sci.*, **20**, 434-439 (2012). <https://doi.org/10.7783/KJMCS.2012.20.6.434>
 30. D. K. Kim, E. J. Han, C. H. Han, O. H. Kom, B. H. Choi, I. S. Hwang, Y. Z. Chae, M. Y. Kim, and S. K. Park, *Anal. Sci. Technol.*, **22**, 504-513 (2009). <https://doi.org/10.5806/AST.2009.22.6.504>
 31. S. J. Jung, S. T. Kang, C. H. Han, S. J. Kim, S. K. Ko, Y. H. Kim, Y. K. Kim, B. S. Kim, and B. H. Choi, *J. Food Hyg. Saf.*, **25**, 402-409 (2010). <http://koreascience.or.kr/article/JAKO201014435573345.pdf>
 32. European Food Safety Authority, Cadmium dietary exposure in the European population. Parma, Italy. <https://doi.org/10.2903/j.efsa.2012.2551> (2012)
 33. World Health Organization, Cadmium. Food Additives Series. Geneva (2011).
 34. I. S. Cho, S. J. Kim, A. S. Park, J. A. Kim, J. I. Jang, S. D. Lee, I. S. Yu, and Y. Shin, *J. Food Hyg. Saf.*, **35**, 354-364 (2020). <https://doi.org/10.13103/JFHS.2020.35.4.354>
 35. M. K. Lee, J. S. Park, H. C. Lim, and H. S. Na, *Korean J. Food Preserv.*, **15**, 253-260 (2008). <https://koreascience.kr/article/JAKO200818259610460.pdf>
 36. International Agency for Reserch on Cancer, Monographs on the the evaluation of carcinogenic risks to human. Inorganic and organic lead compounds (2006).
 37. International Agency for Reserch on Cancer, Monographs on the the evaluation of carcinogenic risks to human. Beryllium, cadmium, mercury, and exposures in the glass manufacturing industry (1993).

38. International Agency for Reserch on Cancer, Monographs on the the evaluation of carcinogenic risks to human. Some drinking-water disinfectants and contaminants, including arsenic (2004).
39. Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives, Evaluation of certain food additives and contaminants(Seventy-first report). WHO Technical Report Series, No.956 (2010).
40. European Food Safety Authority, Cadmium in food. Scientific Opinion on Lead in Food (2010).
41. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation, 식품 중 유해오염물질 위해평가실무표준매뉴얼. Cheongju, Korea (2019). https://www.nifds.go.kr/brd/m_15/view.do?seq=12708
42. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation, Risk Assessment of Arsenic. Cheongju, Korea (2016). https://www.nifds.go.kr/brd/m_271/view.do?seq=10141
43. World Health Organization, Specifications for the identify and purity of food additives and their toxicological evaluation (Tenth report of the JECFA). WHO Technical Report Series. 373:15. Geneva, Switzerland (1967).
44. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation, Risk Assessment of Mercury. Cheongju, Korea (2016). https://www.nifds.go.kr/brd/m_271/view.do?seq=7913

Authors' Positions

Young Shin	: Researcher
Sang-Hun Park	: Researcher
Seung-Hye Han	: Researcher
So-Hyun Park	: Researcher
Ji-Hye Kim	: Researcher
Hyun-Jung Jang	: Department Head
Ae-Kyoung Kim	: Department Head
Ju-Seung Park	: Researcher Director