

서울지역 유통한약재의 통계적 품질관리
- 회분, 산불용성회분, 건조감량, 유해중금속을 중심으로 -

김동규 · 김복순 · 한창호 · 김은주 · 최병현 · 박승국*·#

서울시보건환경연구원 한약재검사팀, *경희대학교 생명과학대학
(Received May 19, 2009; Revised June 26, 2009; Accepted July 6, 2009)

Statistical Quality Control of Herbal Drugstuffs Distributed in Seoul Area
- Centering around Ash, Acid-insoluble Ash, Loss on Drying
and Hazardous Heavy Metals -

Dong Gyu Kim, Bog Soon Kim, Chang Ho Han, Eun Ju Kim, Byung Hyun Choi and Seung Kook Park*·#

Herbal Medicines Inspection Team, Seoul Metropolitan Government Research Institute of Public Health
and Environment, QuaCheon-Si 427-070, Korea

*Institute of Life Science and Resources, Kyung Hee University, Yongin 449-070, Korea

Abstract — To survey the status of quality control of major ingredients of 'Ssanghwatang (Oriental medicine used for fatigue)', we analyzed 1,024 samples (9 kinds) of medical herbs to determine amounts of ashes, acid-insoluble ashes, loss on drying that are major elements to ensure basic quality of herbal drugstuffs. After ash analysis, *Paeoniae Radix* (from China) failed to meet the herbal standard criterion. After yielding Z-score(indicating the probability of exceeding its criterion) *Zizyphi Fructus*, *Zingiberis Rhizoma*, *Paeoniae Radix*, *Rehmanniae Radix Preparata* became objects of intense quality control (=IQC). Analysis on loss on drying shows *Cinnamomi Cortex* was unsuitable and was put under the IQC. In case of respective heavy metals, *Angelicae Gigantis Radix*, *Cnidii Rhizoma*, *Cinnamomi Cortex* exceeded the maximum permissible range for Cd. The 3 kinds of sub-standards were put to the IQC. Statistic figures showed a significant correlation (*t*-test, $p < 0.01$) between country-of-origin and sub-quality rates. Compared to domestic one, imported medicinal herbs were less suitable in regard of acid-insoluble ash, loss on drying and Pb/Hg content. Meanwhile, amounts of Acid-insoluble ash showed positive relation with amounts of Pb ($r=0.202$) and As ($r=0.243$) among heavy metals leading to an inference that herbs of which root/rhizome is used for medical purposes attribute its high heavy metal content to the fine earth/sand being stuck to its root stalk.

Keywords □ herbal medicines, quality control, Z-score

한약재는 "한약" 또는 "한약제제"를 제조하기 위하여 원료로 사용되는 생약으로 식물, 동물의 전체 또는 부분 그리고 광물 등 천연물로 건조 등 가공하여 만든 원료의약품을 말하며, 식물 유래의 것이 제일 많다. 품질관리의 목적은 수요자가 요구하는 품질을 확보하고 유지하기 위한 활동을 말하며 크게 두 가지로 나뉘어 볼 수 있다. 첫 번째는 관능검사, 규격검사를 통하여 약용 식물의 기원, 회분, 산불용성회분, 건조감량, 지표성분, 정유함량 등을 재배 및 가공과정에서 표준관리하여 약용성분을 보존, 증

강시키는 것이고, 두 번째는 표준제조공정을 따르지 않아서 발생하는 외부로부터의 중금속오염, 곰팡이 발생, 잔류농약 및 잔류이산화황 등의 유해물질의 오염을 관리하여 안전성이 보장된 한약재를 공급하는 것이다. 그러나 현재 한약재는 의약품으로서와 식품의 원료로 재배 및 유통되기 때문에 품질의 균일화, 규격화가 어렵고, 다양한 유통과정에서 값싼 수입품과 위품들이 혼입되어 유통될 가능성이 높아 유통한약재에 대한 기본품질의 관리가 필요하다.¹⁻³⁾

지금까지의 한약재의 품질과 관련된 연구는 한약재의 재배, 수입, 포장, 유통 등의 문제점과 개선방안에 관한 연구,⁴⁾ 처방에 많이 사용되는 한약재의 규격 및 유해물질 모니터링,⁵⁾ 한약재의 기원식물에 관한 문헌조사,⁶⁾ LC/MSD를 이용한 한약재

#본 논문에 관한 문의는 저자에게로
(전화) 031-201-2655 (팩스) 031-204-8116
(E-mail) skpark@khu.ac.kr

함량조사와 쌍화탕 지표성분 동시분석,^{7,8)} 한약재의 미네랄과 일반성분의 분석⁹⁾ 등 규격검사에 관한 것과, 한약재의 중금속과 잔류농약의 오염,^{10,11)} 한약제제의 중금속 함량 모니터링,¹²⁾ 유통 한약재의 잔류이산화황에 대한 조사,^{13,14)} 한약재 세척 전/후와 탕액 중 개별중금속 함량분석^{15,16)} 등 유해물질에 관한 보고가 있으나 개별적인 모니터링이 대부분이며 시장에서 유통되는 한약재의 통계적 품질관리에 대한 연구는 이루어지지 않았다.

따라서 본 연구에서는 동의보감의 처방서인 방약합편¹⁷⁾에 열기가 손상되었을 때나 강정 및 피로회복, 병 후 기가 허약하고 식은땀이 날 때 매우 효과가 있다고 알려진 한약제제인 쌍화탕의 백작약, 숙지황, 황기, 당귀, 천궁, 육계, 감초, 생강 및 대추에 함유된 회분량, 산불용성회분량, 건조감량 및 유해중금속의 함량과 통계수치 Z-값을 이용하여 집중관리품목을 선정하였다. 그리고 약용부위에 붙은 미세한 토사의 영향을 알 수 있는 산불용성회분^{18,19)}과 개별중금속의 함량 사이의 상관관계를 조사하여 한약재의 품질관리 기초자료를 제공하고자 한다.

실험방법

실험재료

실험에 사용된 한약재는 서울소재 경동약령시장에서 유통되는 것을 포장단위로 구입하여 시료로 사용하였다. 한약재의 명칭과 분류는 약재의 성질과 효능을 파악하는데 중요한 자료가 되며 형태, 산지, 효능, 색채, 약용부위, 효능 등 여러 가지 방법으로 분류할 수 있다.²⁰⁾ 본 실험에서는 한약재 표준제조공정지침²⁾에 의하여 사용부위에 따라 Table I과 같이 분류하였다. 시료는 당귀 130건, 황기 114건, 육계 160건, 천궁 104건, 감초 185건, 작약 145건, 숙지황 109건, 건강 63건 그리고 대추 14건으로 모두 9 품목 1024건이었다. 시료는 포장단위로 잘 섞고, 분쇄 후 50호 (300 μm)의 체로 쳐서 중말의 상태로 하여 기밀용기에 보존 후 실험에 사용하였다.

건조감량, 회분, 산불용성회분

건조감량은 검체 2~6 g을 105°C에서 규정된 조건에서 항량이 될 때의 감량을 건조감량(%)으로 한다. 회분은 시료를 예비탄화한 다음 550°C에서 약 4시간 가열한 뒤 꺼내어 시료의 상태에 따라 덩어리를 깨뜨리거나 회화를 쉽게 하기 위하여 소량의 증류수 혹은 에탄올을 가하여 가열 판에서 건조시키고 항량이 될 때까지 다시 회화하여 회분량(%)을 계산하였다. 산불용성회분은 회화한 회분 도가니에 묽은염산 25 ml를 넣고 5분 동안 가온하고 정량용여과지(No. 5A, Toyo Co., Japan)로 여과, 잔류물을 열탕으로 씻은 뒤 여지를 건조, 회분항과 같은 방법으로 회화하여 산불용성회분량(%)으로 하였다.^{21,22)}

개별중금속 분석

납, 비소와 카드뮴 분석²³⁾을 위하여 시료 전처리에 Microwave Digestion System(MARS 5 Version 194A01, CEM, North Carolina, USA)을 이용하였다. 시험용액의 조제는 마이크로웨이브 분해 용기에 시료 0.5 g을 정밀하게 달아 넣고 질산 12 ml를 가한 후 Hood에서 방치하여 예비분해 후, 용기를 밀폐하고 1200 W Power에서 15분간 200°C까지 상승시킨 후 5분간 온도를 유지하고, 1분간 210°C까지 상승시킨 후 5분간 유지하고 다시 1분간 220°C까지 상승시킨 후 5분간 유지하여 분해하였다. 이를 실온까지 방냉, 탈기하고 용기에 과산화수소를 1 ml를 가하여 탈색시킨 후 초순수를 가하여 50 ml로 희석하여 시험용액으로 하였다. 분석은 Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer(Agilent 7500ce, Agilent, Tokyo, Japan)를 사용하여 분석하였다. 수은은 자동시료주입기가 부착된 Mercury analyzer(Model MA-2, Nippon Instruments Co., Japan)를 사용하였다. 시료 50 mg을 정밀히 달아 고온으로 가열 분해하여 수은을 기화시켜 다공성물질의 표면에 금을 코팅한 수은포집기에 포집, 농축하여 측정하는 가열기화금아말감법(Combustion-Gold Amalgamation Method)으로 측정하였다.

표준인증물질(Certified Reference material: CRM's)을 이용하여 분석값이나 분석법의 정확도를 검증하였다. 한약재의 중금속

Table I - Classification of herbal medicines used in this experiment

Latin name (Korean name)	Domestic	Import	Total	Part used
<i>Angelicae Gigantis Radix</i> (당귀)	130 ¹⁾	-	130	Radix
<i>Astragali Radix</i> (황기)	91	23 (C:23) ²⁾	114	Radix
<i>Cinnamomi Cortex</i> (육계)	-	160 (V:114, C:36, Others:10)	160	Cortex
<i>Cnidii Rhizoma</i> (천궁)	104	-	104	Rhizoma
<i>Glycyrrhizae Radix et Rhizoma</i> (감초)	-	185 (C:178, Others:7)	185	Radix
<i>Paeoniae Radix</i> (작약)	102	43 (C:43)	145	Radix
<i>Rehmanniae Radix Preparata</i> (숙지황)	30	79 (C:79)	109	Radix
<i>Zingiberis Rhizoma</i> (건강)	39	24 (C:21, Others:3)	63	Rhizoma
<i>Zizyphi Fructus</i> (대추)	14	-	14	Fructus
Total	510	514	1024	

¹⁾Numbers of samples.

²⁾C: China, V: Vietnam, Others: Russia, India, Indonesia, Uzbekistan

Table II – Certified concentration of constituent elements

Elements ¹⁾	Certified		Measured		Recovery (%)	C.V. ³⁾ (%)
	Mean ²⁾ (mg/kg)±SD		Mean (mg/kg)±SD			
Pb	0.87±0.03 ³⁾		0.79±0.02		90.8	2.5
As	0.29±0.03		0.28±0.003		96.6	1.1
Cd	0.026±0.003		0.024±0.002		92.3	8.3
Hg	0.031±0.007		0.028±0.001		90.3	3.8

¹⁾The CRM's of Pb, Cd and Hg was Peach leaves (NIST 1547), As was Rice Flower (NIST 1568a).

²⁾Mean values obtained from three measurements.

³⁾C.V. (Coefficient of variation)=(standard deviation/mean value)×100 (n=3)

을 분석하고자 선택한 미국표준과학원의 인증표준물질은 복숭아 잎(NIST, 1547)과 쌀가루(NIST, 1568a)이었다. 표준물질의 회수율 및 표준편차는 Table II와 같았다. 평균 회수율은 납 90.8, 비소 96.6, 카드뮴 92.3 그리고 수은은 90.3% 이었다.

Z-값을 이용한 집중관리품목 선정

건조감량, 회분, 산불용성회분, 개별중금속의 집중관리품목의 선정은 정규확률변수에 대한 표준화변수 Z-값을 이용하여 확률(P)을 구하였고, 식품의약품안전청 검사능력관리규정에 따라 "양호"와 "미흡"의 기준이 되는 Z-값은 2로 하였다.²⁴⁾ 품질검사 항목의 기준초과 확률[1-P(Z)=0.0228]을 기준으로 Z≤2가되는 시료를 집중관리품목으로 선정하였다.

$$Z=(X-\mu)/(\sigma)$$

X : 개별 항목의 식품의약품안전청 규격기준 값

μ : 개별측정치의 평균값

σ : 개별측정치의 표준편차

통계처리

자료의 통계처리는 SPSS package(version 12.0KO)을 이용하여 시료의 평균, 표준편차, 범위를 구하였다. 각 시료 간의 유의성은 독립표본 t-검정, ANOVA로 분석하였으며 사후검정으로 Duncan's multiple range test를 실시하였다.

실험결과 및 고찰

회분, 산불용성회분, 건조감량

시료의 회분량, 산불용성회분량, 건조감량 및 Z-값은 Table III,

Table III – Ash, acid-insoluble ash, loss on drying contents¹⁾ and Z-score²⁾ in herbal medicines

Latin name	n ³⁾	Ash			Acid-insoluble ash			Loss on drying		
		%	KFDA ⁴⁾	Z	%	KFDA	Z	%	KFDA	Z
<i>Angelicae Gigantis Radix</i>	-/130	5.3±0.5 ^d (1.1~5.9)	6.0	1.42	-	-	-	-	-	-
<i>Astragali Radix</i>	-/114	2.9±0.5 ^b (1.9~4.3)	5.0	4.74	0.2±0.2 ^a (0.02~0.9)	1.0	4.67	9.3±1.7 ^b (2.8~12.8)	13.0	2.18
<i>Cinnamomi Cortex</i>	1/160	3.9±0.5 ^c (2.4~5.0)	5.0	2.15	-	-	-	13.1±1.7 ^d (5.4~15.7)	15.5	1.44
<i>Cnidii Rhizoma</i>	-/104	4.4±0.6 ^d (2.5~5.7)	6.0	2.90	0.4±0.2 ^b (0.1~0.8)	1.0	3.22	-	-	-
<i>Glycyrrhizae Radix et Rhizoma</i>	-/185	4.7±0.9 ^d (2.4~6.6)	7.0	2.63	0.4±0.3 ^b (0.1~1.8)	2.0	5.15	8.5±1.4 ^d (3.3~11.9)	12.0	2.58
<i>Paeoniae Radix</i>	1/145	3.7±0.9 ^c (2.5~9.1)	6.5	3.07	0.2±0.1 ^a (0.0~0.5)	0.5	3.54	9.8±1.7 ^c (5.3~13.5)	14.0	2.51
<i>Rehmanniae Radix Preparata</i>	-/109	3.8±1.1 ^c (1.8~5.7)	6.0	2.09	0.8±0.6 ^c (0.1~2.4)	2.5	2.72	-	-	-
<i>Zingiberis Rhizoma</i>	-/63	6.1±1.5 ^f (3.2~7.9)	8.0	1.27	-	-	-	-	-	-
<i>Zizyphi Fructus</i>	-/14	2.3±0.7 ^a (0.2~2.9)	3.0	0.98	-	-	-	-	-	-
Total	2/1024	4.3±1.2			0.4±0.4			10.2±2.4		

¹⁾Mean±standard deviation. The same letters (a~c) in the same column are not significantly different at $p < 0.05$.

Numbers in parenthesis are range.

²⁾Z-score=(Herbal standard criterion announced by KFDA-Mean value obtained after quality test)/Standard deviation

³⁾Number of sample exceeded its criteria/Total number of sample analyzed

⁴⁾Herbal standard criterion announced by KFDA (Not more than %)

Table IV – Comparison of ash, acid-insoluble ash and loss on drying contents

Latin name	Ash (%)		Acid-insoluble ash (%)		Loss on drying (%)	
	Domestic	Import	Domestic	Import	Domestic	Import
<i>Angelicae Gigantis Radix</i>	5.3±0.5 ¹⁾	-	-	-	-	-
<i>Astragali Radix</i>	2.9±0.5	2.9±0.2	0.2±0.2	0.4±0.2	9.4±1.6	8.5±2.0
<i>Cinnamomi Cortex</i>	-	4.0±0.5	-	-	-	13.1±1.7
<i>Cnidii Rhizoma</i>	4.4±0.5	-	0.4±0.2	-	-	-
<i>Glycyrrhizae Radix et Rhizoma</i>	-	4.7±0.9	-	0.4±0.3	-	8.5±1.4
<i>Paeoniae Radix</i>	3.5±0.5	4.4±1.3	0.1±0.1	0.2±0.1	9.8±1.8	9.7±1.3
<i>Rehmanniae Radix Preparata</i>	2.9±0.8	4.2±0.9	0.5±0.5	0.9±0.6	-	-
<i>Zingiberis Rhizoma</i>	7.2±0.5	4.4±0.8	-	-	-	-
<i>Zizyphi Fructus</i>	2.3±0.7	-	-	-	-	-
Total	4.2±1.4	4.3±1.0	0.3±0.2	0.5±0.5	9.6±1.7	10.4±2.7
p-value	0.691		0.000		0.000	

¹⁾Mean of three determination±standard deviation

국산과 수입산의 비교는 Table IV에 나타내었다.

회분은 9품목 1,024건을 시험했으며, 회분량(%)은 건강 6.1, 당귀 5.3, 감초 4.7, 천궁 4.4, 육계 3.9, 숙지황 3.8, 작약 3.7, 황기 2.9 그리고 대추 2.3 이었고, 국산과 수입산 한약재의 회분량은 4.2, 4.3 으로 통계적으로 유의적인 차이는 보이지 않았다(t-test, p>0.05). 회분의 기준을 초과한 품목은 작약 1건(중국)이었고, Z-값을 이용한 회분의 중점관리품목은 대추 0.98, 건강 1.27, 당귀 1.42 이었다. 시료간의 유의성 검정결과(P<0.05)에서 회분의 집단의 수(a~f)가 산불용성회분(a~c), 건조감량(a~d)보다 많았다. 산불용성회분량(%)은 5품목 657건을 시험했으며, 숙지황 0.8, 천궁 0.4, 감초 0.4, 황기 0.2 그리고 작약 0.2으로 모두 1 미만이었다. 수입산 한약재는 산불용성회분량이 0.5로 국산 0.3 보다 통계학적으로 유의하게 높은 분포를 보였다(t-test, p<0.01). 산불용성회분의 기준을 초과하고, Z-값 2 이하인 품목은 없었다. Park 등¹⁹⁾은 뿌리부위의 한약재에는 광물성 협잡물이 붙을 수 있는데, 품질을 높이기 위해서 물로 세척하면 산불용성회분이 뚜렷하게 감소하나, 세척 시 유효성분이 추출되지 않도록 깨끗한 찬물로 될수록 짧은 시간 안에 빨리 끝내야 한다고 했다. 건조감량(%)은 4품목 604건을 시험했으며, 육계 13.1, 작약 9.8, 황기 9.3 그리고 감초 8.5 이었고, 수입산 한약재의 건조감량은 10.4로 국산 9.6 보다 통계학적으로 유의하게 높은 분포를 보였다(t-test, p<0.01). 건조감량의 기준을 초과한 품목은 육계 1건(베트남)이었고, Z-값을 이용한 건조감량의 중점관리품목은 육계 1.44 이었다.

회분, 산불용성회분, 건조감량은 약용식물의 기본적인 품질관리의 상태를 확인하는 중요한 요소이나, 현재 대한약전 및 대한약전외한약(생약)규격집에 수록된 한약재 548품목 중에서 회분 348품목, 산불용성회분 199품목, 건조감량 261품목만이 규격기준이 설정되어 있어, 유통한약재의 적절한 품질의 관리를 위하여 해당 품목에 대한 기준의 설정이 필요하다고 생각한다.

개별중금속 함량

시료의 개별중금속 함량 및 Z-값은 Table V, 국산과 수입산 한약재의 비교는 Table VI에 나타내었다. 개별중금속은 9품목 499건을 시험했으며, 식품의약품안전청 고시에 따른 기준은 납 5, 비소 3, 수은 0.2 그리고 카드뮴은 0.3 mg/kg 이하이다.

납의 함량(mg/kg)은 육계 0.68, 숙지황 0.41, 당귀 0.3, 건강 0.25, 황기 0.23, 작약 0.20, 천궁 0.16, 감초 0.13 그리고 대추 0.10 이었고, 표피부위의 육계가 납 함량이 유의적인 수준에서 높았고, 열매부위의 대추가 제일 낮았다(p<0.05). 수입산 한약재는 납의 함량이 0.35으로 국산 0.24 보다 유의하게 높은 분포를 보였다(t-test, p<0.05). 납 기준을 초과하고 Z-값이 2 이하 품목은 없었다. 비소의 함량(mg/kg)은 숙지황 0.42, 천궁 0.36, 당귀 0.24, 건강 0.17, 작약 0.14, 감초 0.13, 황기 0.8, 육계 0.06 그리고 대추 0.03 이었다. 국산과 수입산 한약재의 비소 함량은 0.21, 0.19으로 통계적으로 유의적인 차이는 보이지 않았다(t-test, p>0.05). 비소의 기준을 초과하고 Z-값이 2 이하인 품목은 없었다. 카드뮴의 함량(mg/kg)은 당귀 0.21, 육계 0.19, 건강 0.15, 천궁 0.14, 작약 0.11, 황기 0.04, 숙지황 0.04, 대추 0.02 그리고 감초 0.01 이었다. 국산과 수입산 한약재의 카드뮴의 함량은 각각 0.13, 0.07을 보였는데, 다른 유해중금속과는 다르게 국산이 수입산보다 통계학적으로 유의하게 높은 분포를 보였다(t-test, p<0.01). 카드뮴의 기준을 초과한 품목은 당귀 3건, 천궁 1건, 육계 1건이었으며, 원산지는 국산 4건, 수입산 1건 이었다. Z-값을 이용한 카드뮴의 중점관리품목은 천궁 0.75, 당귀 1.24, 육계 1.34 이었다. 수은의 함량(mg/kg)은 육계 0.013, 숙지황 0.011, 작약 0.007, 건강 0.007, 당귀 0.005, 천궁 0.005, 황기 0.003, 감초 0.003 그리고 대추가 0.002 이었다. 수입산 한약재는 수은이 0.008로, 국산 0.005 보다 통계학적으로 유의하게 높은 분포를 보였다(t-test, p<0.01). 수은의 기준을 초과하고, Z-값이 2 이하의 품목은 없었다.

Table V – Heavy metal contents¹⁾ and Z-score²⁾ in herbal medicines

Latin name	n ³⁾	Pb		As		Cd		Hg	
		mg/kg	Z	mg/kg	Z	mg/kg	Z	mg/kg	Z
<i>Angelicae Gigantis Radix</i>	3/89	0.30±0.45 ^{ab} (ND~4.03)	10.4	0.24±0.27 ^c (0.004~2.1)	10.4	0.21±0.07 ^c (0.05~0.54)	1.24	0.005±0.006 ^{ab} (0.001~0.04)	34.2
<i>Astragali Radix</i>	-/69	0.23±0.54 ^{ab} (ND~4.38)	8.82	0.08±0.07 ^{ab} (ND~0.29)	42.0	0.04±0.04 ^a (ND~0.22)	7.49	0.003±0.005 ^{ab} (ND~0.03)	36.6
<i>Cinnamomi Cortex</i>	1/44	0.68±1.04 ^c (0.01~4.31)	4.15	0.06±0.06 ^{ab} (ND~0.27)	52.6	0.19±0.08 ^c (0.01~0.42)	1.34	0.013±0.009 ^d (ND~0.04)	19.9
<i>Cnidii Rhizoma</i>	1/67	0.16±0.20 ^{ab} (ND~1.32)	24.6	0.36±0.48 ^d (0.03~2.42)	5.55	0.14±0.21 ^b (0.02~1.78)	0.75	0.005±0.003 ^{ab} (0.001~0.018)	70.5
<i>Glycyrrhizae Radix et Rhizoma</i>	-/62	0.13±0.22 ^a (ND~1.54)	21.9	0.13±0.11 ^{a-c} (ND~0.86)	25.8	0.01±0.01 ^a (ND~0.04)	37.3	0.003±0.004 ^{ab} (ND~0.023)	48.0
<i>Paeoniae Radix</i>	-/75	0.20±0.42 ^{ab} (ND~3.54)	11.5	0.14±0.23 ^{a-c} (0.01~1.9)	12.7	0.11±0.07 ^b (0.01~0.24)	2.90	0.007±0.006 ^{ab} (0.001~0.04)	34.4
<i>Rehmanniae Radix Preparata</i>	-/52	0.41±0.43 ^{ab} (ND~2.58)	10.6	0.42±0.32 ^d (0.01~1.38)	8.00	0.04±0.03 ^a (ND~0.15)	10.1	0.011±0.019 ^{cd} (0.001~0.126)	10.1
<i>Zingiberis Rhizoma</i>	-/32	0.25±0.21 ^{ab} (ND~0.96)	22.7	0.17±0.21 ^{bc} (0.03~1.1)	13.8	0.15±0.07 ^b (0.04~0.26)	2.14	0.007±0.013 ^{ab} (0.001~0.066)	15.3
<i>Zizyphi Fructus</i>	-/9	0.10±0.13 ^a (ND~0.43)	36.9	0.03±0.06 ^a (0.004~0.2)	47.2	0.02±0.01 ^a (0.001~0.03)	33.1	0.002±0.003 ^a (0.001~0.01)	67.1
Total	5/499	0.27±0.50		0.20±0.28		0.11±0.12		0.006±0.009	

¹⁾Mean±standard deviation. The same letters (a~c) in the same column are not significantly different at $p < 0.05$.

Numbers in parenthesis are range. Not Detected (≤ 0.001).

²⁾Z-score=(Herbal standard criterion announced by KFDA-Mean value obtained after quality test)/Standard deviation

³⁾Number of sample exceeded its criteria/Total number of sample analyzed

⁴⁾Herbal standard criterion announced by KFDA (Not more than - Pb:5, As:3, Cd:0.3, Hg:0.2 mg/kg)

Table VI – Comparison of heavy metal contents

Latin name	Pb (mg/kg)		As (mg/kg)		Cd (mg/kg)		Hg (mg/kg)	
	Domestic	Import	Domestic	Import	Domestic	Import	Domestic	Import
<i>Angelicae Gigantis Radix</i>	0.30±0.45 ¹⁾		0.24±0.27	-	0.21±0.07	-	0.005±0.006	-
<i>Astragali Radix</i>	0.23±0.57	0.15±0.12	0.07±0.06	0.17±0.06	0.04±0.03	0.06±0.04	0.003±0.004	0.008±0.011
<i>Cinnamomi Cortex</i>	-	0.68±1.04	-	0.06±0.06	-	0.19±0.08	-	0.013±0.009
<i>Cnidii Rhizoma</i>	0.16±0.20	-	0.36±0.48	-	0.14±0.21	-	0.005±0.003	-
<i>Glycyrrhizae Radix et Rhizoma</i>	-	0.13±0.22	-	0.13±0.11	-	0.01±0.01	-	0.003±0.004
<i>Paeoniae Radix</i>	0.22±0.45	0.11±0.10	0.15±0.24	0.06±0.03	0.12±0.06	0.04±0.01	0.006±0.004	0.009±0.012
<i>Rehmanniae Radix Preparata</i>	0.32±0.35	0.45±0.46	0.32±0.30	0.47±0.32	0.04±0.03	0.04±0.03	0.013±0.032	0.011±0.010
<i>Zingiberis Rhizoma</i>	0.26±0.22	0.19±0.09	0.15±0.21	0.29±0.14	0.14±0.07	0.18±0.08	0.006±0.012	0.016±0.011
<i>Zizyphi Fructus</i>	0.10±0.13	-	0.03±0.06	-	0.02±0.01	-	0.002±0.003	-
Total	0.24±0.42	0.35±0.64	0.21±0.31	0.19±0.23	0.13±0.13	0.07±0.09	0.005±0.009	0.008±0.009
p-value	0.019		0.514		0.000		0.000	

¹⁾Mean of three determination±standard deviation

산불용성회분과 회분 및 개별중금속의 관계

시료의 산불용성회분과 회분 및 개별중금속의 상관계수는 Table VII에 나타내었고, 뿌리부위의 황기 69건, 천궁 67건, 감초 62건, 작약 75건, 숙지황 52건에 대하여 조사하였다.

시료의 평균 산불용성회분은 회분과 상관관계($r=0.286$)를 보였고, 개별중금속과는 납($r=0.202$)과 비소($r=0.243$)에서 상관관계를 보였는데, 뿌리부위 한약재의 경우에 수확, 가공과정에 미세한 토사의 오염으로 인한 개별중금속의 증가와 관련이 있는 것으로 생각된다. Lee 등¹⁵⁾은 한약재의 세척 전/후 비교 시 평균

중금속 함량이 19.5~38.3% 감소하였다고 하였다. 개별중금속의 함량 간의 상관관계는 Table VIII과 같았다. 납은 카드뮴과 감초($r=0.482$), 숙지황($r=0.692$)에서 상관관계를 보였다. 이는 카드뮴은 납, 구리, 아연광석과 항상 같이 존재하며,²⁵⁾ 열매는 납과 카드뮴이 상관관계가 있었다는 Yu 등²⁶⁾의 보고와 유사한 경향을 보였다. 비소는 카드뮴과 황기($r=0.450$), 감초($r=0.367$), 숙지황($r=0.390$)에서, 수은과 감초($r=0.480$)에서 상관관계를 보였다. 카드뮴은 수은과 상관관계를 갖는 품목은 없었다.

이상의 결과로 유통되는 한약재의 개별중금속의 함량은 품종

Table VII – Correlation coefficients among acid-insoluble ash, ash and heavy metal contents

Latin name (Korean name)	n ¹⁾	Acid-insoluble ash					Part used
		Ash	Pb	As	Cd	Hg	
<i>Astragali Radix</i>	69	NS	NS	NS	NS	NS	Radix
<i>Cnidii Rhizoma</i>	67	0.411**	0.252*	NS	-0.258*	NS	Rhizoma
<i>Glycyrrhizae Radix et Rhizoma</i>	62	0.266*	NS	NS	NS	NS	Radix
<i>Paeoniae Radix</i>	75	0.528**	NS	NS	-0.248*	NS	Radix
<i>Rehmanniae Radix Preparata</i>	52	0.412**	0.328*	NS	NS	NS	Radix
Total	325	0.286**	0.202**	0.243**	NS	NS	

¹⁾Numbers of samples.

*, **= $p < 0.05$, $p < 0.01$, respectively, NS; Not significant.

Table VIII – Correlation coefficients among heavy metal contents

Latin name	n	Pb			As		Cd	Part used
		As	Cd	Hg	Cd	Hg	Hg	
<i>Astragali Radix</i>	69	NS	NS	NS	0.450**	NS	NS	Radix
<i>Cnidii Rhizoma</i>	67	NS	NS	NS	NS	NS	NS	Rhizoma
<i>Glycyrrhizae Radix et Rhizoma</i>	62	NS	0.482**	NS	0.367**	0.480**	NS	Radix
<i>Paeoniae Radix</i>	75	NS	NS	NS	NS	NS	NS	Radix
<i>Rehmanniae Radix Preparata</i>	52	NS	0.692**	0.317**	0.390**	NS	NS	Radix
Total	325	0.188**	NS	NS	NS	NS	NS	

¹⁾Numbers of samples.

**= $p < 0.01$, NS; Not significant.

특성과 재배토양의 영향을 받을 수 있으나, 채취 및 가공과정에서 미세한 토양의 오염으로도 유해중금속의 함량에 차이가 있는 것으로 생각되므로 규격화된 표준제조공정의 준수가 필요하다고 생각된다.

결 론

피로회복에 효과가 있는 쌍화탕의 백작약, 숙지황, 황기, 당귀, 천궁, 육계, 감초, 생강 및 대추의 통계적 품질관리 상태를 조사하고자 서울지역에서 유통되는 한약재 9품목 1024건을 대상으로 실험하였다. 회분의 기준을 초과한 품목은 작약 1건(중국)이었고, Z값을 이용한 중점관리품목은 대추, 건강, 당귀, 숙지황이었고, 건조감량의 기준을 초과한 품목은 육계 1건(베트남)이었고, 중점관리품목은 육계이었다. 개별중금속 중에서 카드뮴의 기준을 초과한 품목은 당귀 3건, 천궁 1건, 육계 1건이었으며, 원산지는 국산 4건, 수입산 1건 이었고, 집중관리품목은 천궁, 당귀, 육계 이었다. 원산지 간의 비교에서 수입산 한약재의 산불용성회분, 건조감량, 납, 수은의 함량이 국산보다 통계학적으로 유의하게 높은 분포(t-test, $p < 0.01$)를 보였다. 한약재의 산불용성회분은 개별중금속 중에서 납($r=0.202$)과 비소($r=0.243$)에서 상관관계를 보였다. 뿌리부위의 한약재의 경우에 제조과정에 미세한 토사의 오염으로 인한 개별중금속의 함량에 관련이 있는 것으로 생각 할 수 있다.

감사의 말씀

본 연구는 서울시 보건환경연구원 강북농수산물검사소의 지원으로 이루어졌으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

- 1) 한국의약품수출입협회 한국의약품시험연구소 : 한약재감별주해. 대영, p. 3 (2003).
- 2) 식품의약품안전청 : 한약재표준제조공정지침(I, II). 발간등록번호 11-147000-001652-14, 서울 (2008).
- 3) 한국보건산업진흥원 : 한약품질 및 유통관리제도 조사연구, 보건 의료기술 연구개발사업보고서, p. 2 (2000).
- 4) Choi, S. M., Chung, H. J., Yoon, Y. S., Lee, M. Y., Choi, H. S. and Sung, H. J. : Studies on the administration of the quality of herbal medicine. *J. Korean Oriental Med.* **21**, 99 (2000).
- 5) Kim, H. K., Chun, J. M., Lee, A. Y., Choi, J. H., Jang, S. and Ko, B. S. : Quality monitoring of oriental medicines. *J. Korean Oriental Med.* **11**, 155 (2005).
- 6) Kim, K. S. and Kim, H. C. : Review on original plants of oriental medicines used in Korea. *Korean J. Crop Sci.* **48**, 79 (2003).
- 7) Hong, Y. J., Park, W. H., Ko, S. K., Yu, I. S., Kang, H. G. and Kim, M. H. : Quantitative analysis of commercial herbal medicines and study on identification method by LC/MSD.

- Report of Seoul Institute of Health and Environment* **40**, 242 (2004).
- 8) 김옥희 : 고속액체크로마토그래피를 이용한 쌍화탕 원료 지표성분의 동시분석. 단국대학교 박사학위 논문, 서울 (2008).
 - 9) Hwang, J. B., Yang, M. O. and Shin, H. K. : Survey for approximate composition and mineral content of medicinal herbs. *Korean J. Food Sci. Technol.* **29**, 671 (1997).
 - 10) Kim, J. H., Yang, J. Y. and Moon, Y. S. : The risk assessment of residual pesticides and heavy metals in rehmanniae radix preparata. *J. of the Environmental Sciences* **16**, 1287 (2007).
 - 11) Cha, Y. Y., Hea, S. K., Cha, B. C. and Sea, S. H. : Determination of heavy metals and residual pesticides in oriental medical materials. *Korean J. Oriental Physiology & Pathology* **21**, 226 (2007).
 - 12) Jung, D. H. and Park, M. K. : The content of heavy metals in manufactured herbal medicines. *J. of the Environmental Sciences* **17**, 129 (2008).
 - 13) Kim, M. K., Hur, M. H., Lee, C. H., Jin, J. S., Jin, S. K. and Lee, Y. J. : Monitoring of residual sulfur dioxide in herbal medicines. *Korean J. Pharmacogn* **35**, 276 (2004).
 - 14) Sin, Y. M., Kim, J. I., Kim, W. S., Park, K. S., Kim, J. M., Chae, R. C., Cho, D. H., Kim, D. B. and Kim, O. H. : Studies on the residual contents of sulfur dioxide in herbal medicines distributed at domestic. *Korean J. Oriental Physiology & Pathology* **21**, 1039 (2007).
 - 15) Lee, S. H., Choi, H. Y. and Park, C. H. : Determination of heavy metal contents in oriental medical materials and the effect of washing. *Korean J. Biotechnol. Bioeng.* **18**, 90 (2003).
 - 16) Kim, J. S., Hwang, S. W., Kim, J. M. and Ma, J. Y. : Monitoring research for heavy metals as endocrine disruptors in sibjeondaebotang and its ingredients herbal medicines (II). *Yakhak Hoeji* **45**, 448 (2001).
 - 17) 저자미상 : 방약합편, 일원서각, p. 76 (2006).
 - 18) 한국약학대학 약전분과회 : 대한약전 해설서, 문성사, p. 117 (1999).
 - 19) 박창호, 강신인 : 한약재 포제기술. 청문각, p. 32 (2006).
 - 20) 서부일, 이제현, 최호영, 권동렬, 부영민 : 한약본초학. 영림사, p. 27 (2006).
 - 21) 식품의약품안전청 : 대한약전-제9개정. 신일북스, 서울 (2008).
 - 22) 식품의약품안전청 : 대한약전외한약(생약)규격집, 서울 (2007).
 - 23) 식품의약품안전청 고시 제2006-17호 「생약등의중금속허용기준및 시험방법」 (2006).
 - 24) 식품의약품안전청 고시 제2008-25호 「검사능력관리규정」 (2008).
 - 25) Niesink, R. J. M., De Vries, J. and Hollinger, M. A. : Toxicology : Principles and applications. CRC Press, Inc., Florida, USA (1996).
 - 26) Yu, I. S. and Hong, Y. J. : Analysis of heavy metals in medicinal plants. *Report of Seoul Institute of Health and Environment* **42**, 62 (2006).