

사군자탕 제조 시 탕약과 찌꺼기 중의 중금속 함량연구

박 문 기

대구한의대학교 보건환경학과

(2007년 2월 8일 접수; 2007년 2월 26일 채택)

Concentration of Heavy Metals in Sagunjatang, Decoction and Its Ingredient Herbal Medicines

Moon-Ki Park

Department of Health Environment, Deagu Haany University, Gyungbuk 712-715, Korea

(Manuscript received 8 February, 2007; accepted 26 February, 2007)

We studied concentration of heavy metals in Sagunjatang. In this experiment was analyzed the concentration of heavy metals of boiled Sagunjatang, decoction and its ingredient herbal medicines. The concentration of heavy metals(As, Pb, and Cd) were analysed using ICP-AES, and Hg was analysed by mercury analyzer. The average concentration of heavy metals in Sagunjatang were as follows : In all ingredient herbal medicines (*Glycyrrhizae Radix*, *Attractylodes Macrocephala*, *Poria Cocos* and *Jinseng*) of Sagunjatang, As(arsenite) contents in all samples was in the range of 0.369-0.723ppm, Cd(cadmium) was in the range of 0.000-0.085ppm, Pb(lead) was in the range of 0.059-0.871ppm and Hg(mercury) was in the range of 0.001-0.004ppm. In boiled Sagunjatang, the concentration of heavy metals(As, Pb, Cd and Hg) was in the range of 0.000-0.016ppm, respectively. In the decoction of herbal medicines after boiled, the concentration of heavy metals was in the range of 0.004-0.387ppm. These results suggest that Sagunjatang which we take is less harmful than herbal medicine itself, and there are more significant for using the decoction of herbal medicines.

Key Words : Sagunjatang, Heavy metal, Ingredient herbal medicines, Decoction

1. 서 론

인류는 고대로부터 질병의 예방 및 치료에 자연 계로부터 얻어지는 천연산물인 생약을 사용하여 왔고, 지금까지 생약을 이용한 전통적인 약물요법은 수천 년 동안 경험에 의해 축적된 이론을 바탕으로 국민보건의 큰 부분을 담당하고 있다¹⁾. 경제발전과 더불어 인구의 고령화 및 질병의 많은 변화로 건강에 대한 관심이 어느 때보다 높아졌다. 이에 비례하여 한약재의 소비가 크게 증가하여, 국내 자생 또는 재배 한약재의 수요를 충족할 수 없어, 많은 한약재들이 중국, 베트남 등에서 수입하고 있는 실정이다²⁾.

한약재는 그 특성상 식물한약재의 경우에 토양 같은 자연환경을 기반으로 자라기 때문에 주변 환

경오염에 많은 영향을 받을 수밖에 없으며³⁾, 또한 급속한 산업화로 인한 공해, 폐수, 농약의 유출로 대기, 수질, 토양이 산성화되면 대부분의 금속의 용해도가 증가되어 작물이 중금속에 오염될 가능성이 상대적으로 크다.

금속은 자연적으로 지각과 토양에 존재하며 인간의 활동에 의해서도 환경에 배출될 수 있는 오염물질이다 화학적으로는 비중이 5-7 이상으로, 이동성이 적어 최초로 오염되는 지역에 머무르는 경향이 강하고, 토양 내에 수년에서 수십 년의 반감기를 가지면서 쉽게 분해 되지 않고 축적되는 특성이 있다. 이 중 철, 아연, 구리, 등은 인체에 필요한 물질이나, 납, 카드뮴, 수은, 비소 등은 인체에 유해하며, 체내에서 대사되지 않고 축적되므로 주의를 기울여야 한다, 유해금속이 체내에 축적되면 암 등 각종 질병과 호르몬 대사 이상까지 초래 하는 것으로 보고하고 있다⁴⁾.

Corresponding Author : Moon-Ki Park, Department of Health Environment, Deagu Haany University, Gyungbuk 712-715, Korea

Phone: +82-53-819-1420

E-mail: moonki@dhu.ac.kr

중금속이 체내로 들어오면 13-16년의 반감기를 가지고 장기간 체내에 축적되어^{5,6)} 금속을 포함하는 여러 효소의 활성을 저하시키고 뼈, 신장 및 간에 만성 중독증상을 유발하며^{7,8)} 다른 중금속 또는 무기질과 상호 작용하여 동물의 성장을 저해한다고 보고하고 있다.^{9,10)}

한약재 내의 중금속농도는 여러 번 사회적 문제가 된 바 있으며, 한약의 장기투여로 인한 중금속의 인체축적¹¹⁾의 위해성에 대한 우려가 고조됨에 따라 한약재 내의 중금속 기준도 최근 강화되어 식약청(식품의약품안전청)에서는 2002년에 고시한 생약(한약재를 포함한다)·한약제제·생약만을 주성분으로 하는 생약제제 중 중금속은 30 ppm 이하에서 2005년도에는 식물성생약은 Pb 5mg/kg 이하, As 3 mg/kg 이하, Hg 0.2 mg/kg 이하, Cd 0.3 mg/kg 이하 강화하였다.¹²⁾

탕약이라 하면 생약(生藥:초근목피 등 자연에서 얻을 수 있는 거의 모든 것)에 적당한 양의 물을 가하고 약한 불에 달여서 잔 약액(藥液)으로 정의하고 있다. 탕약의 원료인 생약 역시 주변 환경오염에 많은 영향을 받으리라는 것을 예상할 수 있다.¹³⁾

한방에서의 많이 쓰이고 있는 사군자탕의 처방은 보기양심(補氣養心)하여 비위(脾胃)를 돕고 기가 허약하여 숨이 가쁘고 짧으며 위가 약하고 헛배가 불러 음식을 먹을 수 없고 장명하리(腸鳴下痢). 토하고 해역(咳逆)하는 자, 또는 비기가 쇠약하고 폐기가 허손하여 몸이 마르고 얼굴색이 노랗고 피부에 잔주름이 많거나 결막과 입술이 창백한 자를 치료하는 데 쓴다.

따라서 본 연구는 한약의 복용법 중 가장 많은 비중을 차지하는 탕제의 안전성에 대한 기초 자료를 제공하고자 한방에서 많이 처방되어지는 사군자탕을 통하여 건조상태의 여러 약제와 이것을 달여서 탕제로 만들었을 때의 탕약속의 중금속과 탕약 후의 한약재 찌꺼기의 중금속량의 변화를 측정하여 한약재의 오염을 파악하고 이를 적절하게 관리 하기 위한 기초 연구 자료를 제공하는데 의의가 있다.

2. 재료 및 실험 방법

2.1. 재료

2.1.1. 한약재의 종류와 산지

본 연구에 사용한 한약재는 사군자탕의 재료로 대구약령시와 일반 한약업사 등에서 유통되고 있는 약제들을 구입하여 사용하였으며 재료의 대표성을 위하여 주산지를 표본 추출하여 혼합한 후 실험에 사용하였다. 그 항목으로는 감초(중국산), 복령(강원도 삼척), 백출(강원도 삼척), 인삼(충남 금산)이다.

2.1.2. 시약 및 기구

표준시약은 Junsei사에서 구입하여 미량피펫으로 희석하여 사용하였고 실험에 사용된 증류수는 RO system으로 여과한 증류수를 Barnstead 사의 nanopure system을 통해 재 여과하여 사용하였다. 실험에 사용된 여과지는 Whatman No.6을 사용하고 시약은 모두 특급시약을 사용하였다.

As, Pb, Cd분석에 사용한 표준원액은 SCC 사이언사의 표준용액을 사용하였고, Hg은 0.001% L-cystein용액으로 HgCl₂를 용해시켜 표준용액으로 사용하였다. As, Pb, Cd분석은 ICP Atomic Emission Spectrometer(ICP-IRIS, Thermo Elemental, U. S. A)를 사용하였고, Hg분석에는 Mercury Analyzer(Model SP-3D, Nippon Instrument Co. Japan)를 사용하였다.

2.2. 실험 방법

2.2.1. 개별한약재와 찌꺼기

약재의 분석 시 대표시료가 되도록 사군자탕에 사용되는 감초, 복령, 백출 및 인삼의 약제들을 먼저 각각 200 g씩 취하여 혼합하고 다시 100 g을 취하여 시료로 하였다.

각 종류의 한약재를 건조한 후 분쇄기로 분쇄하여 균질화 시켜서 1주일간 동결 건조시킨 다음 분석시료로 사용하였다. 모든 시료는 3회 반복 분석 후 평균값을 취하였으며, 그 방법을 Fig. 1에 나타내었다.

사군자탕을 달여 낸 찌꺼기의 분석을 위하여 동일한 방법으로 건조시켜 분쇄하여 균질화한 후 시료로 사용하였다.

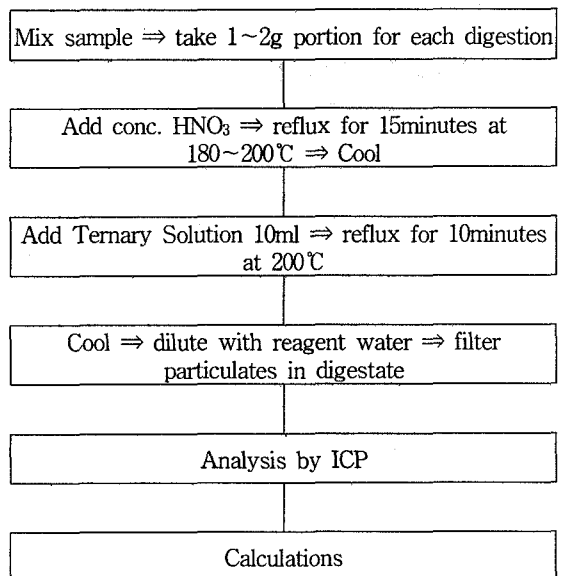


Fig. 1. Procedure of method.

본 실험에서는 한약재의 중금속을 분석하기위해 건조된 시료 1~2 g을 250 ml 비이커에 넣고 HNO₃ 5 ml를 가하여 시료가 고르게 도포시킨 후 처음에는 서서히 가열한 후 50℃ 이후 온도를 올려 180~200℃에서 가열 건조시킨다. 이것을 냉각한 후 ternary solution 10 ml/g을 가하고 다시 200℃ 전열판에서 가열하여 H₂SO₄ 및 HClO₄의 흰 연기를 어느 정도 날려 보낸 후 분해 액이 백색이 되거나 갈색으로 투명하게 되면 분해를 멈춘다. 이후 상온에서 냉각시킨 다음 뜨거운 물을 가해 250 ml 메스플라스크에 여지를 사용하여 여과하였고, 여과된 용액을 분석용액으로 사용하였다. 이때의 여지는 No.6 및 No.7을 사용한다.

2.2.2. 달여 낸 탕약

사군자탕은 감초, 복령, 백출 및 인삼의 4가지 약재를 각각 5 g씩 취하여 20 g을 한 찹으로 처방되어진다. 처방된 한 찹의 약재를(일반한의원과 가정집에서 행하는 동일한 방법인) 약탕기를 이용하여 물 1 L를 첨가하여 2시간 30분간 달여 낸 후 찌꺼기를 제거하고 분석에 이용하였다.

2.2.3. As, Pb, Cd 및 Hg 분석

As, Pb, Cd분석은 Table 1의 조건에 따라 실험하였으며, Hg의 분석은 가열기화금아말감법(combustion gold amalgamation method)으로 실험하였으며 수은분석기의 조작 조건은 Table 2에 나타내었다.

Table 1. Operation conditions of ICP analysis

Instruments	Conditions
Flush Pump Rate (ml/min)	2.03
Analysis Pump Rate (ml/min)	1.85
RF Power (W)	1150
Nebulizer Flow (PSI)	25.0
Wave length (nm)	As(189.042)
	Cd(228.802)
	Pb(220.353)

Table 2. Operation conditions of mercury analysis

Classification	Standard Solution	Sample
Heating condition Mode selector	Low	Low
pennal time	1st step	4 min
	2nd step	6 min
Additive	Unnecessary	M+S+M+B+M ¹⁾

주 1) M : Sodium carbonate anhydrous : Calcium hydroxide = 1:1 (w/w)

B : Aluminium Oxide anhydrous

S : Sample

3. 결과 및 고찰

사군자탕의 개별약재 재료, 탕약 및 탕약을 달여 낸 후의 찌꺼기에서 모두 중금속 농도는 식약청에서 고시된 식물성 생약의 허용기준에 따라 As의 경우 허용농도 3 ppm이하, Pb 농도는 허용농도 5 ppm이하, Cd 농도는 허용농도 0.3 ppm이하, Hg 농도는 허용농도 0.2 ppm이하로 검출 되었다.

이는 십전대보탕 구성 한약재의 개별중금속 함량을 연구한 다른 연구자들²⁾의 경향과 유사한 결과를 확인할 수 있었고, 아울러 한약재중의 중금속의 함량은 탕약으로 달인 경우가 현저하게 감소함을 알 수 있었다.

3.1. 개별 약재의 중금속 농도

개별 약재 중 감초의 경우 As는 0.723 ppm, Cd는 0.019 ppm, Pb는 0.871 ppm, Hg는 0.001 ppm으로 검출 되었으며, 복령의 경우 As는 0.369 ppm, Cd는 검출되지 않았고, Pb는 0.338 ppm, Hg는 0.004 ppm으로 검출 되었고, 백출의 경우 As는 0.703 ppm, Cd는 0.076 ppm, Pb는 0.059 ppm, Hg는 0.001 ppm으로 검출 되었으며, 인삼의 경우 As는 0.709 ppm, Cd는 0.085 ppm, Pb는 0.104 ppm, Hg는 0.003 ppm으로 검출 되었다. 이는 김¹⁴⁾등이 연구한 국내산과 중국산의 다용한약재중의 중금속 함량연구와 유사한 결과를 얻을 수 있었고, 따라서 본 실험에 사용한 개별한약재는 일반적으로 상용하는 약재로 보아도 무방할 것으로 사료되어지며, 그 결과를 Fig. 2에 나타내었다.

3.2. 달여 낸 탕약중의 중금속 농도

선별된 개별 한약재를 혼합하여 일정시간 달여 낸 사군자탕의 탕약에서 분석된 중금속 함량은 As의 경우 0.016 ppm, Cd의 경우는 검출되지 않았고, Pb의 경우 0.007ppm, Hg의 경우 0.002 ppm으로 검출 되었다. 대부분의 소비자들이 한약 복용을 탕약 형태로 섭취하는 것을 고려할 때 앞의 개별한약재 중의 중금속이 탕약으로 달여진 후 우려할 수준의 많은 중금속이 추출되지는 않았으나 소비자의 복용

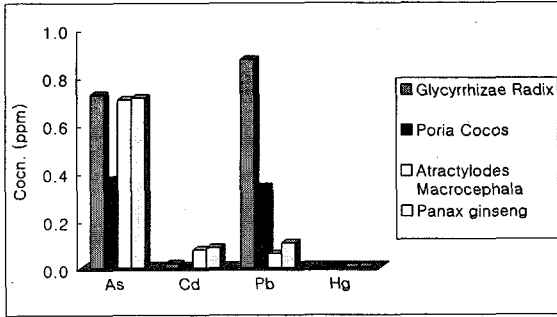


Fig. 2. Concentration of heavy metals in ingredient herbal medicines.

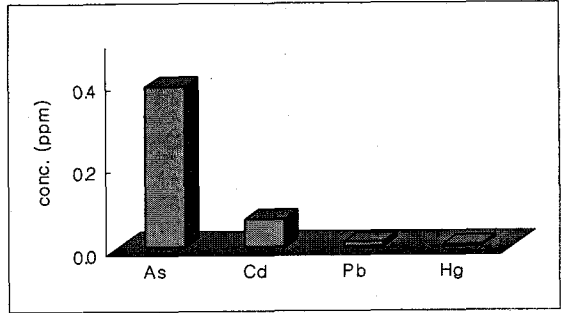


Fig. 4. Concentration of heavy metals in decoction of herbal medicines after boiling.

형태에 따른 최종 소비단계의 중금속 섭취량을 판단할 수 있는 근거자료를 제시할 수 있다고 판단된다. 그 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 이러한 오염된 한약 복용으로 인하여 유아나 어린이 및 여성들의 건강이 위협에 노출되고 있다는 연구보고¹⁵⁾와 중금속이 오염된 한약을 복용함으로써 인한 신장 및 간장의 기능장애¹⁶⁾등 많은 관련 논문이 발표되고 있다.

3.3. 탕약을 달여 낸 후 찌꺼기의 중금속 농도

탕약을 달여 낸 찌꺼기의 경우 As는 0.387 ppm, Cd는 0.069 ppm, Pb는 0.013 ppm, Hg는 0.004 ppm으로 검출되었다. 이러한 결과는 개별한약재중의 중금속함량과 비교할 때 상당량이 약재 찌꺼기에 잔류한다는 것을 알 수 있었고 향후 한약을 달여 내는 시간과 달여 내는 용기 및 장치 등의 차이에 따른 중금속의 추출정도 등을 세밀하게 관찰 할 필요가 있고 약재의 유효성분과 중금속 등의 함량 비교를 한약재 찌꺼기의 분석을 통하여 확인 할 수 있을

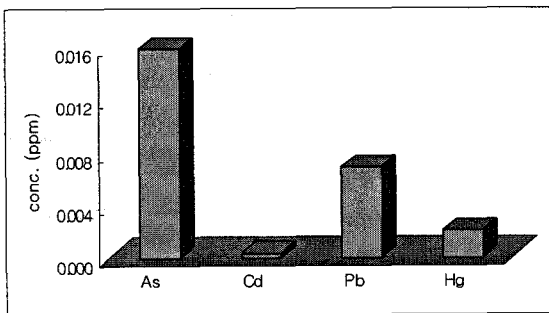


Fig. 3. Concentration of heavy metals in Sagunjatang.

것이다. 그 결과를 Fig. 4에 나타내었다.

3.4. 개별약재와 탕약 전후의 중금속 비교

개별 약재 중 감초, 복령, 백출 및 인삼 중의 중금속 농도의 합은 As가 2.504 ppm, Cd가 0.18 ppm, Pb가 1.372 ppm 그리고 Hg가 0.009 ppm 이었다. 동일한 방법과 조건에서 분석한 탕약과 찌꺼기의 중금속 농도는 As가 0.403 ppm, Cd가 0.069 ppm, Pb가 0.020 ppm 및 Hg가 0.006 ppm이었다. 그 결과를 Table 3에 나타내었다. 이 결과에서 알 수 있듯이 개별약재의 중금속이 혼합 처방되어 탕약이 될 경우, 탕약으로의 중금속 추출은 극히 미미하여 우려할 수준이 아니었다. 그리고 탕약을 추출하고 남은 찌꺼기에서 오히려 다소 많은 농도의 중금속이 잔류함을 알 수 있었다. 이러한 결과로부터 일반 한의원과 가정집에서 여러 개별약재의 혼합에 의한 전문 탕제가 달여질 때 깨끗하고 좋은 약재를 사용함이 가장 좋으며, 또한 한약 찌꺼기의 부가적인 응용활용과 일부의 퇴비자원화 등에도 신중을 기할 필요가 있으며 안전성이 확인된 찌꺼기만 사용할 수 있도록 지침을 마련하여야 할 것이다.

Table 3에서 보는 바와 같이 개별약재에서 추출 후의 탕약과 찌꺼기를 비교하면 As의 경우 총괄개별약재에 비하여 16.09% 가 추출되었고 Cd의 경우는 38.3%, Pb의 경우 0.95% 그리고 Hg의 경우 66.7%가 추출됨을 확인할 수 있었다. 물론 약재에 따른 중금속의 추출정도가 차이를 보임을 알 수 있고 이러한 결과는 탕제에서 상호작용에 의한 약리작용의 규명에 중요한 기초 자료가 될 것이다.

Table 3. Comparison of heavy metals ingredient, Sagunjatang and decoction.

(ppm)

	As	Cd	Pb	Hg
Ingredient Herbal Medicine	2.504	0.180	1.372	0.009
Sagunjatang Decoction	0.403	0.069	0.020	0.006

4. 결 론

처방된 사군자탕과 원료인 개별약재, 탱제후의 중금속 농도를 비교분석한 결과, 개별약재인 감초, 복령, 백출과 인삼에서 중금속 As, Pb, Cd 및 Hg의 농도범위는 각각 0.369-0.723 ppm, 0.000-0.085 ppm, 0.059-0.871 ppm 및 0.001-0.004 ppm이었다. 그리고 탱약에는 모든 중금속이 0.000-0.016 ppm의 농도범위였고, 탱을 달여 내고 남은 찌꺼기에서는 0.004-0.387 ppm의 농도범위였다. 따라서 탱제 전보다 탱제 후 중금속 농도는 현저히 줄어드는 것을 볼 수 있었고, 상당량은 찌꺼기에 잔존 하였다. 즉, 개별한약재의 중금속이 혼합 처방되어 탱제가 될 경우, 탱제로의 중금속 추출은 극히 미미하여 우려할 수준이 아니었다. 그리고 탱약을 추출하고 남은 찌꺼기에서 오히려 다소 많은 농도의 중금속이 잔류함을 확인 할 수 있었다. 이는 사군자탕의 원료인 개별 한약재와 탱으로 달이기 전의 혼합한약재의 중금속 함량이 탱약의 중금속 함량과 일치한다고 볼 수 없음을 의미한다. 하지만 원료 한약재를 직접 사용하는 환제 및 산제의 경우 중금속 오염이 심각할 수 있다는 것을 보여준다. 그러므로 원료 한약재, 탱약, 환제 및 산제의 중금속 함량기준을 각각 달리 설정하여야 할 것이다. 아울러 한약의 복용에 있어 탱약의 형태로 복용함이 환제나 산제보다는 다소 안전할 수 있다는 것을 추정할 수 있다.

그리고 탱약 또한 어느 정도 개별 약재의 중금속 함량에 따라 영향을 받으므로 한약재의 철저한 관리가 필요하고, 우수하고 검증된 한약재를 사용하여 탱약을 만들어야 할 것으로 사료 된다.

감사의 글

본 연구는 2006년도 대구한의대학교 기린연구비의 지원에 의하여 이루어진 것입니다. 이에 감사드립니다.

참고문헌

- 1) 주윤정, 오정미, 하병현, 홍성선, 2001, 생약제제의 등록규정 차별화에 관한 연구, 한국임상약학회지, 11(2), 68~76.
- 2) 김진숙, 황성원, 김종문, 마진열, 2001, 한약재와 탱액(십전대보탕) 중 내분비계 장애물질로서의 개별 중금속 함량분석(II), 약학회지, 45(5), 448~454.
- 3) 박해모, 최경호, 정진용, 이선동, 2006, 한약재 복용으로 인한 금속 섭취량 추정 및 위해성 평가 연구, 한국환경보건학회지, 32(2), 186~191.

- 4) 국립환경연구원, 2005, 내분비계장애물질의 이해, 행정간행물등록번호, 11-1480 083-000285-01.
- 5) Rhee, S. J., S. O. Kim and W. K. Choe, 1992, Effect of cadmium dose injection on peroxidative damage in rat liver (in Korean), J. Korean Soc. Food Sci. Nutr. 21, 601~607.
- 6) Jung, S. Y., S. J. Rhee, and J. A. Yang, 1990, Effect of dietary vitamin E levels on lipid peroxidation and enzyme activities of antioxidant system in brain of cadmium administered rats (in Korean), J. Korean Soc. Food Sci. Nutr., 25, 575~580.
- 7) Rabinowits, M. B. and G. W. Weatherill, 1973, Lead metabolism in the normal human; stable isotope studies, Science, 182, 275.
- 8) Chio, S. I., J. H. Lee, and S. R. Lee, 1994, Effect of green tea beverage for the removal of cadmium and lead by animal experiments (in Korean), Korean J. Food Sci. Technol., 26, 745~749.
- 9) Schroeder, H. A. and W. H. Vinton, 1962, Hypertension induced in rats by small doses of cadmium, Am. J. Physiol., 202, 515~518.
- 10) Nordberg, M., 1984, General aspects of cadmium: transport, uptake and metabolism by the kidney, Environ., Health Persp., 54, 13~20.
- 11) 강상훈, 이상순, 조승연, 정용삼, 2002, 인체 환경 연구를 위한 한약재, 작업장 공기 및 모발의 원소 분석, 한국환경보건학회지, 28(3), 64~71.
- 12) 식약청, 2005, 생약 등의 중금속 허용 기준 및 시험방법 개정, 식품의약품안전청고시 제 2005-62호.
- 13) 최성인, 황진봉, 권중호, 김현구, 1998, 생약재에 의한 중금속의 체내흡수 억제 효과, 한국식품과학회지, 30(2), 456~460.
- 14) 김승영, 2005, 한약재 중의 유해물질에 대한 안전성 연구, 석사학위논문, 대구한의대학교.
- 15) Fernando L. M. and S. C. Sara, 1996, Fetal abnormalities and use of substances sold in herbal remedies shops, Drug safety, 14, 68~75.
- 16) Ahmed, 2002, Maternal bone lead as an independent risk factor for fetal neurotoxicity: a prospective study, Pediatrics, 110, 110~117.