

국내 유통 한약재에서 이산화황 잔류량에 대한 연구

신영민* · 김재이 · 김우성 · 박건상 · 김종명¹ · 채갑용 · 조대현 · 김대병 · 김옥희

부산지방식품의약품안전청 시험분석센터, 1: 부경대학교 수산과학대학 수산해양생명과학

Studies on the Residual Contents of Sulfur Dioxide in Herbal Medicines Distributed at Domestic

Yeong Min Sin*, Jae I Kim, Woo Seong Kim, Kun Sang Park, Jong Myoung Kim¹, Kab Ryong Chae, Dae Hyun Cho, Dae Byung Kim, Ok Hee Kim

Center for Food & Drug Analysis, Busan Regional Food & Drug Administration,
1: Department of Aquaculture, College of Fishery Sciences, Pukyong National University

We investigated the residual contents of sulfur dioxide (SO₂) on the 280 kinds of herbal medicines distributed at 8 cities including in Seoul, Busan, Daegu, Gwangju, Jecheon, Yeongju, Geumsan and Jeonju in Korea. The residual contents of SO₂ were determined by modified Monier-Williams method. The residual contents of SO₂ were not detected at 206 products in total 280 products. However, it was detected below 100 ppm in 39 products, between 101 and 1000 ppm in 30 products and exceeded 1000 ppm in 5 products. SO₂ contents ranged 11 ~ 2339 mg/kg (mean 293 mg/kg) at domestic samples distributed. Regardless of region, SO₂ contents were not found at *Notopterygii Rhizoma*, *Ligustici Scinensis Rhizoma et Radix*, *Bombyx Batryticatus*, *Coicis Semen*, *Cnidii Rhizoma*, *Anemarrhenae Rhizoma*, *Gardeniae Fructus*, *Alismatis Rhizoma*. But it's found at *Batatatis Rhizoma*, *Paeoniae Radix* and *Codonopsis Radix* of every region collected the samples. SO₂ contents were not detected at 58 products which collected cultural fields of domestic. After treated with water wash and hot water extraction, the reduction rates of sulfur dioxide were appeared with 14.3% ~ 40.4% and 55.2% ~ 100.0%, respectively. These data will be used to establish a criterion of residual sulfur dioxide in herbal medicines.

Key words : herbal medicines, bleaching agent, sulfur dioxide, extraction

서 론

최근 수입 한약재에서 잔류농약, 표백제 처리 등 안전성문제, 환경오염 등에 의한 유해물질이 재배지에서부터 가공과정까지 잔류할 가능성 때문에 국민들의 관심이 증대되고 있다. 아황산염류는 환원력이 매우 강한 아황산을 만들어 이것이 황산으로 산화되는 작용을 이용하여 보존료, 표백제, 항산화제 등으로서 많은 분야에서 널리 사용되어 왔으며, 이산화황으로서 규제되고 있다¹⁻³⁾. 한약재의 경우에 있어서는 가공·유통과정에서 선택을 좋게 하며 빠른 건조를 위해 연탄건조, 유향훈증 등의 방법을 사용하는 것으로 조사된 바 있으며, 또한 한약재의 갈변이나 충해 방지 등의 목적으로 이산화황으로 처리하여 이산화황이 잔류되고 있다.

현재, 우리나라 식품첨가물공전에서는 무수아황산 (sulfur dioxide), 산성아황산나트륨 (sodium bisulfite), 아황산나트륨 (sodium sulfite), 차아황산나트륨 (sodium hydrosulfite), 메타중아황산나트륨 (sodium metabisulfite), 메타중아황산나트륨 (potassium metabisulfite)으로 6종의 아황산염류가 고시되어 있으며⁴⁾, 미국에서는 아황산염류가 1959년 GRAS(Generally Recognized As Safe)물질로 수재되어 식품에 사용하도록 하고 있다⁵⁾. 또한, 식품 원료로 수입되는 한약재에 대해서는 이산화황의 잔류기준을 10 ppm이하로 규정하고 있으며, 한약(생약)규격집⁶⁾에서는 206품목에 대한 이산화황의 검사기준을 30 ~ 1,500 ppm이하로 규정하고 있고 있다.

이산화황 함유량에 대한 연구는 천연 유래 이산화황 함유량에 대한 보고⁷⁻⁹⁾, 이산화황 함유량 최적 분석방법을 설정하기 위하여 모니어윌리엄스변법, 개량랭킹법, 이온크로마토그래피법 등을 비교한 것^{7,10-13)}, 한약재에 대해서는 몇 품목의 한약재에 대한 모니터링을 실시한 경우¹⁴⁾가 있었다. 선행연구에서는 중국 (성도, 서

* 교신저자 : 신영민, 부산시 남구 용당동 123-7 부산시약청 시험분석센터

· E-mail : sinymin@kfda.go.kr, · Tel : 051-610-6121

· 접수 : 2007/05/23 · 채택 : 2007/06/29

안, 안국), 일본 (동경, 오사카) 및 한국 (8개지역)에서 유통되고 있는 한약재의 이산화황 함유량을 조사하였으나¹⁵⁾, 국내 생산한약재에 대한 이산화황 함유량에 대한 연구는 거의 없는 실정이다.

따라서 본 연구에서는 국내에서 가장 많이 생산되는 한약재 30품목을 선정하고, 유통 중인 한약재에 함유되어 있는 이산화황 함유량을 조사하고자 하였다. 또한, 한약재를 “탕”으로 음용하는 것을 감안하여 약탕기로 한약액을 조제하여 이산화황 함유량을 조사하여 이들 자료를 토대로 유통되는 한약재의 안전성을 확립하고 관련 허용기준을 설정하는데 기초자료로 활용하고자 한다.

재료 및 방법

1. 실험재료

실험에 사용된 한약재는 부산, 대구, 광주, 전주, 서울, 금산, 제천, 영주(8지역) 및 국내재배지인 식약청 육천재배장, 진안, 의성 신물질연구소, 장수 (4개지역)에서 생산 및 유통중인 30품목을 수거하였다(Table 1). 이산화황 증류장치는 Kontes glass co.사에서 구입하였다. 한약액 (탕액) 조제에는 대웅전기산업(주)(대웅약탕기, DWP-3000M)의 제품을 구입하여 사용하였다. 과산화수소는 Sigma co.사의 제품을 사용하였으며 그 외 사용된 모든 시약은 모두 특급을 사용하였다. 국내 재배지에서 구입한 한약재 건조에는 한형과학의 송풍건조기를 사용하였으며, 57±1℃로 건조시킨 후 냉동 보관하였다.

Table 1. List of herbal medicine collected

Name of herbal medicines		Family Name
Korean	English	
강활	<i>Notopterygii Rhizoma</i>	미나리과, Umbelliferae
고본	<i>Ligustici Sinensis Rhizoma et Radix</i>	산형과, Umbelliferae
구기자	<i>Lycii Fuctus</i>	가지과, Solanaceae
길경	<i>Platycodi Radix</i>	도라지과, Campanulaceae
당귀	<i>Angelicae Radix</i>	미나리과, Umbelliferae
당삼	<i>Codonopsis Radix</i>	도라지과, Campanulaceae
독활	<i>Angelicae Tuhou Radix</i>	오갈피과, Araliaceae
맥문동	<i>Liriopsis Tuber</i>	백합과, Liliaceae
목단피	<i>Moutan Radicis Cortex</i>	작약과, Paeoniaceae
방풍	<i>Saposhnikovia Radix</i>	미나리과, Umbelliferae
백강잠	<i>Bombyx Batryticatus</i>	누에과, Bombycidae
백지	<i>Angelicae Dahuricae Radix</i>	미나리과, Umbelliferae
백출	<i>Atractylodis Rhizoma</i>	국화과, Compositae
사삼	<i>Adenophorae Radix</i>	도라지과, Campanulaceae
산약	<i>Batatatis Rhizoma</i>	마과, Dioscoreaceae
시호	<i>Bupleuri Radix</i>	미나리과, Umbelliferae
의의인	<i>Coicis Semen</i>	벼과, Gramineae
자소엽	<i>Perillae Folium</i>	꿀풀과, Labiatae
작약	<i>Paeoniae Radix</i>	모란과, Paeoniaceae
절파모	<i>Fritillariae Bulbus</i>	백합과, Liliaceae
지황	<i>Rehmanniae Radix</i>	현삼과, Scrophulariaceae
전궁	<i>Cnidii Rhizoma</i>	미나리과, Umbelliferae
천마	<i>Gastrodiae Rhizoma</i>	난과, Orchidaceae
지모	<i>Anemarrhenae Rhizoma</i>	백합과, Liliaceae
치자	<i>Gardeniae Fructus</i>	꼭두서니과, Rubiaceae
택사	<i>Alismatis Rhizoma</i>	택사과, Alismataceae
하수오	<i>Polygoni Multiflori Radix</i>	마디풀과, Polygonaceae
형개	<i>Schizonopetae Herba</i>	꿀풀과, Labiatae
황금	<i>Scutellariae Radix</i>	순형과, Labiatae
황기	<i>Astragali Radix</i>	콩과, Leguminosae

2. 이산화황 측정

이산화황 함유량은 모니어-윌리엄스변법^{16,17)}에 따라 정량하였다. 모니어 윌리엄스 증류장치를 이용하여 플라스크에 증류수 400 ml와 시료 약 10~50 g에 5% 에탄올 100 ml를 수회에 걸쳐 흔들어서 넣고 냉각관에는 circulator를 통해 10℃로 유지하였으며, 질소 가스를 0.2 l/min 속도로 주입하면서 15분 동안 예열하였다. 이어서 분액여두를 통해 플라스크에 4 N 염산 90 ml를 넣은 다음 1시간 45분간 가열하여 메틸레드 지시약이 첨가된 3% 과산화수소용액 30 ml가 첨가된 수기에 이산화황을 포집하였다. 이 용액을 0.01 N 수산화나트륨용액으로 적정하여 아래식에 의하여 이산화황의 양을 계산하였다. 각 실험치는 각각의 시료를 3회 반복하여 얻은 값을 평균값으로 하여 산출하였다.

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

V : 0.01N NaOH의 소비량(ml), f : 0.01N NaOH의 역가, S : 시료의 양(g)

3. 수세 및 가열에 따른 이산화황 경시변화 관찰

이산화황함유량이 많이 검출된 시료 13종을 선정하여 수세에 따른 이산화황의 잔류량 변화를 관찰하였다. 수세과정은 시료 약 10 g을 삼각플라스크에 취하여 증류수 300 ml를 넣어서 손으로 1분간 진탕하였다. 수세과정을 1회, 3회, 5회 반복하여 이산화황 경시변화를 관찰하였다. 가열에 따른 이산화황 경시변화를 관찰하기 위해서 대웅약탕기를 사용하여 시료 약 10 g을 취해 증류수 800 ml를 넣은 후 한약 1첩을 달이는 방법으로 남은 양이 200 ~ 300 ml이 될 때까지 가열시간 150분 가열 후 이산화황 잔류량을 검사하였다. 1, 3, 5회 수세 후 상기조건으로 가열하여 이산화황 잔류량을 검사하였다. 각 실험치는 각각의 시료를 3회 반복하여 얻은 값을 평균값으로 하여 산출하였다.

결 과

1. 회수율

잔류이산화황의 회수율 실험은 표준품 (Na₂SO₃)를 대상으로 하여 평균 90%이상의 높은 결과를 얻었다.

2. 이산화황 함유량

국내 유통 한약재를 대상으로 한 이산화황 잔류량 결과는 Table 2~4 및 Fig. 1, 2에 나타내었다. 국내 유통 한약재 8개지역 (서울, 부산, 대구, 광주, 전주, 금산, 제천, 영주)에서 30품목 222종, 국내재배중인 한약재 58종을 수거하여 총 280품목에 대하여 이산화황의 잔류량을 조사하였다. 국내 유통 한약재 222종 중 74종에서 잔류이산화황이 검출되었으며 검출율은 33.3%이었다. 품목별로 이산화황 검출 양상을 살펴보면 강활, 고본, 백강잠, 의의인, 지황, 천마, 치자, 택사 (8종)에서는 지역에 상관없이 불검출이었으나, 당삼, 산약, 작약(3종)의 경우 모든 수거지역에서 이산화황이 검출되었다(Table 2~3, Fig. 1). 이산화황 검출율을 살펴보면 검출된 74품목 중 100 mg/kg 이하 39종(52.7%), 101 ~ 500 mg/kg 18종(24.3%), 501 ~ 1,000 mg/kg 12종(16.2%), 1,001 ~ 2,000 mg/kg

4종(5.5%), 2,000 mg/kg 이상 1종(1.3%)로 나타났다. 구기자 : 41 mg/kg, 당귀 : 13 mg/kg, 맥문동 : 17 mg/kg, 방풍 : 28 mg/kg, 백지 : 20 mg/kg, 자소엽 : 17 mg/kg, 지황 : 33 mg/kg, 하수오 : 69 mg/kg, 형개 : 15 mg/kg 및 황기 : 14 mg/kg으로 수거지역 평균 100 mg/kg 미만으로 나타났으며, 당삼 : 939 mg/kg, 목단피 : 1,284 mg/kg, 사삼 : 548 mg/kg 및 천마 : 633 mg/kg으로 나타나 다른 시료에 비해 이산화황 함량이 상당히 높은 것으로 나타났다. 서울의 길경, 부산의 독활, 목단피, 제천의 목단피 및 제천의 사삼에서 1,000 mg/kg이상의 많은 이산화황을 함유하고 있었다.

지역별 이산화황 평균 검출량변 (Table 4, Fig. 2)에서는 부산이 520 mg/kg로 가장 높았고 그 다음이 금산 457 mg/kg, 제천 374 mg/kg 등으로 나타났으며, 광주의 경우 66 mg/kg으로 가장 낮게 나타났다. 국내 유통 한약재의 경우 이산화황잔류량은 11 ~ 2,339 mg/kg 범위에서 평균 293 mg/kg 으로 나타났다.

3. 한약재 원료의 자연 함유량 조사

이산화황의 잔류가 한약재 원료 자체에서 유래된 것인지, 재배 및 유통과정에서 사용한 것인지를 조사하고자 국내 생산지에서 재배되고 있는 한약재를 수거하여 유통한약재와 같은 조건으로 57±1℃에서 건조시켜 잔류량을 조사하였다.

28품목 58종 (강활, 길경, 당귀, 독활, 백지, 맥문동, 사삼, 작약, 지모, 지황, 황금, 고본, 당삼, 목단피, 방풍, 의의인, 자소엽, 절패모, 천궁, 천마, 하수오, 구기자, 백출, 산약, 시호, 황기, 치자, 택사)을 4지역 식약청 옥천재배장, 진안속근약초시험장, 의성 신물질연구소, 장수의 약초시험장과 재배농가의 재배지에서 직접 수거하여 검사한 결과, 모두 이산화황이 검출되지 않아 한약재

원료 자체에는 이산화황이 함유되어 있지 않음을 확인하였다.

4. 수세 및 가열에 따른 이산화황 경시변화 관찰

한약재는 한약재자체로 직접 응용하는 것이 아니라 달여서 탕액으로 섭취하는데, 실제로 한약재를 달이는 과정을 통하여 살펴보고 한약재의 수세과정과 가열 이후의 이산화황 잔류량의 변화를 조사하여 실제 탕액의 응용전에 이산화황이 얼마나 감소하는 지를 살펴보았다.

수세에 따른 변화를 관찰하기 위해서 이산화황이 많이 검출된 한약재를 시료로 하였다. 이산화황이 잔류량이 100 ~ 2000 mg/kg 인 한약재 13종 (길경, 당삼, 독활, 목단피, 백출, 사삼, 산약, 시호, 작약, 절패모, 천궁, 하수오, 황금)을 선정하여 분석한 결과를 Table 5에 나타내었다. 길경과 당삼의 경우 3회 수세후 이산화황 큰 변화가 없었으나 시호, 황금 등은 수세 회수를 거듭할수록 큰 폭의 감소율을 보였다. 3회 수세과정을 거친 후의 이산화황 감소율은 14.3% ~ 40.4%으로 나타났다.

또한, 실제로 응용하는 조건으로 한약재의 달이는 과정과 같이 가열에 따른 이산화황 잔류량 변화는 Table 6에 나타내었다. 작약 (608 mg/kg)은 3회 수세후 달이는 경우 이산화황이 검출되지 않았으며, 수세후 달임과정을 통하여 대부분 감소하는 것을 알 수 있었다. 사삼, 천궁, 하수오, 황금 등의 경우에서도 90%이상의 높은 감소율을 보였다. 3회 수세후 달임과정의 이산화황 감소율은 55.2% ~ 100.0%로 나타났다. 이상의 결과에서 수세에 따른 잔류량은 큰 변화를 보이지 않았지만, 탕액을 조제하기 위해서 가열에 의한 잔류량 변화는 크게 나타났다. 따라서, 수세 및 가열과정을 거쳐 실제 섭취하는 형태의 한약액에서는 이산화황의 함유량이 크게 감소함을 알 수 있었다.

Table 2. Determination of SO₂ residual contents in domestic herbal medicines by modified M.W. method

Herbal medicines	Conc.(ppm)	Seoul	Busan	Daegu	Gwangju	Jecheon	Yeongju	Geumsan	Jeonju
<i>Notopterygii Rhizoma</i>		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Ligustici Sinensis Rhizoma et Radix</i>		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Lycii Fuctus</i>		29	12	81	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Platycoodi Radix</i>		1619	5	N.D.	30	N.D.	499	18	15
<i>Angelicae Radix</i>		N.D. ^a	N.D.	N.D.	13	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Codonopsis Radix</i>		-	939	-	-	-	-	-	-
<i>Angelicae Tuhou Radix</i>		N.D.	1371	24	102	54	13	N.D.	37
<i>Liriopsis Tuber</i>		N.D.	N.D.	17	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Moutan Radicis Cortex</i>		N.D.	2339	N.D.	N.D.	1246	268	N.D.	N.D.
<i>Saposhnikoviae Radix</i>		12	43	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Bombyx Batryticatus</i>		N.D.	N.D.	-	-	-	N.D.	N.D.	-
<i>Angelicae Dahuricae Radix</i>		27	N.D.	N.D.	12	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Atractylodis Rhizoma</i>		N.D.	729	N.D.	15	69	N.D.	N.D.	-
<i>Adenophorae Radix</i>		648	534	70	N.D.	315	N.D.	554	1166
<i>Batatis Rhizoma</i>		162	575	492	349	875	174	954	1160
<i>Bupleuri Radix</i>		N.D.	235	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	-	N.D.
<i>Coicis Semen</i>		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Perillae Folium</i>		N.D.	13	24	14	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Paeoniae Radix</i>		31	654	59	16	48	124	300	195
<i>Fritillariae Bulbus</i>		N.D.	623	N.D.	278	-	349	-	-
<i>Rehmanniae Radix</i>		N.D.	37	N.D.	28	-	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Cnidii Rhizoma</i>		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Gastrodiae Rhizoma</i>		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	633
<i>Anemarrhenae Rhizoma</i>		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Gardeniae Fructus</i>		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Alismatis Rhizoma</i>		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Polygoni Multiflori Radix</i>		N.D.	122	N.D.	15	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Schizonepetae Herba</i>		14	17	19	12	14	N.D.	N.D.	N.D.
<i>Scutellariae Radix</i>		288	575	240	28	N.D.	29	N.D.	N.D.
<i>Astragali Radix</i>		N.D.	18	N.D.	12	N.D.	N.D.	N.D.	11

^a N.D. : the calculated values less than 10 ppm. ⁻ : herbal medicine is not collected.

Table 3. Determination of SO₂ residual contents in the various herbal medicines by modified Monier-Williams method

List	Herbal medicines	Conc.(ppm)	n	SO ₂	Mean
1	<i>Notopterygii Rhizoma</i>		0	-	-
2	<i>Ligustici Sinensis Rhizoma et Radix</i>		0	-	-
3	<i>Lycii Fuctus</i>		3	12~81	41
4	<i>Platycodi Radix</i>		5	15~1619	436
5	<i>Angelicae Radix</i>		1	13	13
6	<i>Codonopsis Radix</i>		1	939	939
7	<i>Angelicae Tuhou Radix</i>		6	13~1371	267
8	<i>Liriopsis Tuber</i>		1	17	17
9	<i>Moutan Radicis Cortex</i>		3	268~2339	1284
10	<i>Saposhnikoviae Radix</i>		2	12~43	28
11	<i>Bombyx Batryticatus</i>		0	-	-
12	<i>Angelicae Dahuricae Radix</i>		2	12~27	20
13	<i>Atractylodis Rhizoma</i>		3	15~729	271
14	<i>Adenophorae Radix</i>		6	70~1166	548
15	<i>Batatatis Rhizoma</i>		8	110~954	461
16	<i>Bupleuri Radix</i>		1	235	235
17	<i>Coicis Semen</i>		0	-	-
18	<i>Perillae Folium</i>		3	13~24	17
19	<i>Paeoniae Radix</i>		8	16~654	178
20	<i>Fritillariae Bulbus</i>		3	278~623	417
21	<i>Rehmanniae Radix</i>		2	28~37	33
22	<i>Cnidii Rhizoma</i>		0	-	-
23	<i>Gastrodiae Rhizoma</i>		1	633	633
24	<i>Anemarrhenae Rhizoma</i>		0	-	-
25	<i>Gardeniae Fructus</i>		0	-	-
26	<i>Alismatis Rhizoma</i>		0	-	-
27	<i>Polygoni Multiflori Radix</i>		2	15~122	69
28	<i>Schizonepetae Herba</i>		5	12~19	15
29	<i>Scutellariae Radix</i>		5	28~575	232
30	<i>Astragali Radix</i>		3	11~18	14
Total			74	11~2339	293

Table 4. Determination of SO₂ residual contents in herbal medicines collected at 8 sites by modified M.W. method

City	n/total	Mean (ppm)
Seoul	9/29	314
Busan	16/29	520
Daegu	9/28	114
Gwangju	14/28	66
Jecheon	7/26	374
Yeongju	7/29	208
Geumsan	4/27	457
Jeonju	7/26	310

Table 5. Comparison of SO₂ residual contents in water wash from various herbal medicines

Sample	City	SO ₂ contents (ppm)				Rate of decrease (%)			
		Raw	A	B	C	Raw	A	B	C
<i>Platycodi Radix</i>	Seoul	1586	1303	1264	1259	0	17.8	20.3	20.6
<i>Codonopsis Radix</i>	Busan	876	681	660	657	0	22.3	24.7	25.0
<i>Angelicae Tuhou Radix</i>	Busan	1112	975	999	888	0	12.3	10.2	20.1
<i>Moutan Radicis Cortex</i>	Busan	1935	1740	1511	1450	0	10.1	21.9	25.1
<i>Atractylodis Rhizoma</i>	Busan	538	506	488	446	0	5.9	9.3	17.1
<i>Adenophorae Radix</i>	Junju	1025	909	871	853	0	11.3	15.0	16.8
<i>Batatatis Rhizoma</i>	Keumsan	386	372	355	280	0	3.6	8.0	27.5
<i>Bupleuri Radix</i>	Busan	148	130	122	101	0	12.2	17.6	31.8
<i>Paeoniae Radix</i>	Busan	608	580	502	467	0	4.6	17.4	23.2
<i>Fritillariae Bulbus</i>	Busan	505	482	439	433	0	4.6	13.1	14.3
<i>Cnidii Rhizoma</i>	Junju	635	569	475	415	0	10.4	25.2	34.6
<i>Polygoni Multiflori Radix</i>	Busan	121	118	116	104	0	2.5	4.1	14.0
<i>Scutellariae Radix</i>	Busan	549	534	467	327	0	2.7	14.0	40.4

A : After washing once with distilled water, B : After washing twice with distilled water, C : After washing three times with distilled water

Table 6. Comparison of SO₂ residual contents in hot water extracts from various herbal medicines

Sample	City	SO ₂ contents (ppm)					Rate of decrease (%)				
		Raw	A	B	C	D	Raw	A	B	C	D
<i>Platycodi Radix</i>	Seoul	1586	540	443	678	401	0	66.0	72.1	57.3	74.7
<i>Codonopsis Radix</i>	Busan	876	210	155	121	98	0	76.0	82.3	86.2	88.0
<i>Angelicae Tuhou Radix</i>	Busan	1112	186	287	186	152	0	83.3	74.2	83.3	86.3
<i>Moutan Radicis Cortex</i>	Busan	1935	556	523	424	301	0	71.3	73.0	78.1	84.4
<i>Atractylodis Rhizoma</i>	Busan	538	43	53	77	63	0	92.0	90.1	85.7	88.3
<i>Adenophorae Radix</i>	Junju	1025	215	257	155	91	0	79.0	74.9	84.9	91.1
<i>Batatatis Rhizoma</i>	Keumsan	386	231	211	200	173	0	40.1	45.3	48.2	55.2
<i>Bupleuri Radix</i>	Busan	148	47	28	20	20	0	68.2	81.1	86.5	86.5
<i>Paeoniae Radix</i>	Busan	608	64	39	0	0	0	89.5	93.6	100.0	100.0
<i>Fritillariae Bulbus</i>	Busan	505	118	156	131	108	0	76.6	69.1	74.1	78.6
<i>Cnidii Rhizoma</i>	Junju	635	294	148	71	43	0	53.7	76.7	88.8	93.2
<i>Polygoni Multiflori Radix</i>	Busan	121	7	6	4	3	0	94.2	95.0	96.7	97.5
<i>Scutellariae Radix</i>	Busan	549	36	34	24	27	0	93.4	93.8	95.6	95.1

A : After extracted, B : Extraction after washing once with distilled water, C : Extraction after washing twice with distilled water, D : Extraction after washing three times with distilled water

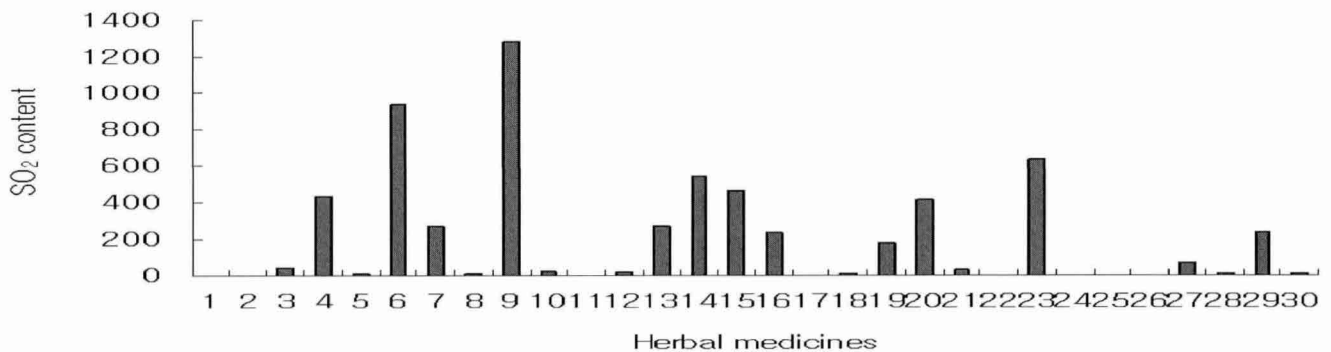


Fig. 1. Comparison of SO₂ residual contents in the various herbal medicines by modified Monier-Williams method.

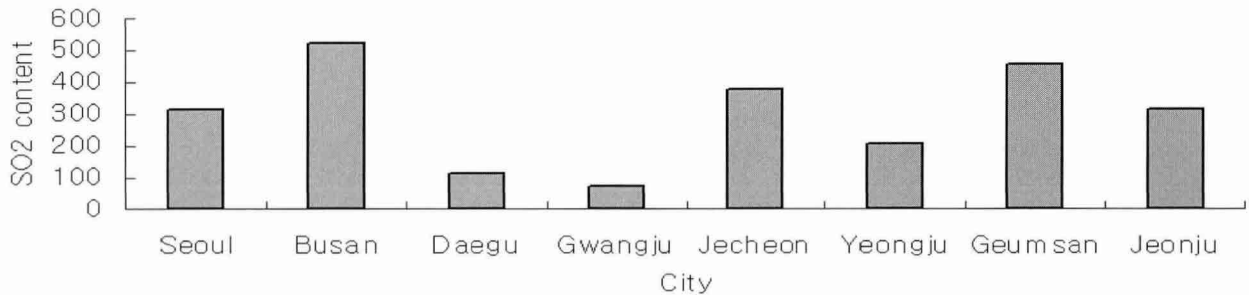


Fig. 2. Comparison of SO₂ residual contents in herbal medicines collected at 8 sites by modified M.W. method.

고찰

국내에서 생산 및 유통되는 한약재를 대상으로 잔류이산화황에 대한 모니터링을 실시하였다. 유통 한약재 222종에서 이산화황이 74종에서 검출되었으며, 검출율은 33.3% 이었다. 모니터링 결과 총 222종 중 148종에서는 불검출(66.7%)이었으며, 품목별로 이산화황 검출 양상을 살펴보면 강활, 고본, 백강잠, 의의인, 지황, 천마, 치자, 택사(8종)에서는 지역에 상관없이 불검출이었으나, 당삼, 산약 및 작약(3종)의 경우 모든 수거지역에서 이산화황이 검출되었다. 국내 유통 한약재중 부산에서 유통되는 한약

재에서 이산화황이 높게 나타났다. 국내재배지에서 직접 수거한 한약재(58종)에서는 이산화황이 검출되지 않아 한약재 원료 자체에는 이산화황이 함유되어 있지 않은 것이 확인되었다.

국내 유통 한약재의 경우 이산화황함유량이 11 ~ 2,339 mg/kg (평균 293 mg/kg)이었으며, 수세에 따른 경시변화를 관찰한 결과, 3회 수세과정을 거친 경우의 이산화황 감소율은 14.0% ~ 40.4%로 나타났다. 또한, 가열에 따른 이산화황 잔류량 변화는 3회 수세 후 달이는 경우의 이산화황 감소율은 55.2% ~ 100.0%로 나타났다.

수세 및 가열과정을 거쳐 실제 섭취하는 형태의 탕액에서는 원재료보다 이산화황의 잔류량이 크게 감소하였으나 완전히 제

거되지는 않는 것으로 나타났다. 따라서, 안전한 한약재를 국민에게 공급하기 위해서는 이산화황 함유량에 대한 지속적인 모니터링 및 품질관리가 필요할 것으로 사료된다.

참고문헌

1. Talor, S.L., Higley, N.A., Bush, R.K. Sulfite in foods. *Adv. Food Res.* 30: 1-7, 1986.
2. Roberts, A.C., Macweeny, D.J. The use of sulfur dioxide in the food industry. *J. Food Technol.* 7: 221-226, 1972.
3. Su, Y.C., Taylor, S.L. Sulphite analysis of food ingredients : false positive responses with butter flavourings in the optimized Monier-Williams method. *Food Add. Conta.* 12: 153-160, 1995.
4. Korean Code of Food Ingredient. Korea Food & Drug Administration. 2005.
5. U.S.A. Code of Federal Regulations 21: 4-1-98 ed., § 182.3862. Sulfur dioxide 438.
6. The Korean Herbal Pharmacopoeia. Korea Food & Drug Administration 2005(Gosi No. 2005-44).
7. Kim, H.Y., Lee, Y.J., Hong, K.H., Kwon, Y.K., Ko, H.S., Lee, Y.K., Lee, C.W. Studies on the Contents of Naturally Occuring of Sulfite in foods. *Korean J. Food Sci. Technol.* 32(3):544-549, 2000.
8. Kim, H.J., Kim, Y.K., Smith, M. Sulfite analysis by ion exclusion chromatography : Application to the food and beverage industries. *Food Technol. Nov:* 113-115, 1988.
9. Holak, W., Patel, B. Differential pulse polarographic determination of sulfites in foods. *J. Assoc. Off. anal. Chem.* 70: 572-578, 1987.
10. Lawrence, J.F., Chadha, R.K. Determination of sulfite in foods by headspace liquid chromatography. *J. Assoc. Off. Anal. Chem.* 71: 930-933, 1988.
11. Perfetti, G.A., Joe, F.L., Diachenko, G.W. Liquid chromatographic determination of sulfite in grapes and selected grape products. *J. Assoc. Off. Anal. Chem.* 72: 903-906, 1989.
12. Holak, W., Specchio, J. Determination of sulfites in foods by simultaneous nitrogen purging and differential pulse polarography. *J. Assoc. Off. Anal. Chem.* 72: 476-480, 1989.
13. Sullivan, J.J., Hollingworth, T.A., Wekell, M.M., Newton, R.T., Larose, J.E. Determination of sulfite in food by flow injection analysis. *J. Assoc. Off. Anal. Chem.* 69: 542-546, 1986.
14. Kim, C.M., Song, B.J., Na, H.S. Determination of sulfite contents in medicinal herbs. *Korean J. Food Sci. Technol.* 29(3):375-379, 2000.
15. Sin, Y.M., Cho, T.Y., Lee, K.S., Kim, S.H., Park, H.J., Leem, D.G., Lee, C.H., Kim, W.S., Chae, K.R., Lee, Y.J. and Choi, S.Y. Studies on the Contents of Occuring Sulfur Dioxide in Herbal Medicines distributed at Market. *J. Environ. Sci.* 13(12):1109-1115, 2004.
16. Korean Code of Food. Korea Food & Drug Administration. 2005.
17. AOAC : Official Methods of Analysis 16th ed. Assoc. Offic. Anal. Chem. 1984.