

생약재에 의한 중금속의 체내흡수 억제 효과

최성인 · 황진봉 · 권중호* · 김현구

한국식품개발연구원, *경북대학교 식품공학과

Suppressing Effect of Medicinal Plants on the Intestinal Absorption of Heavy Metals

Sung-Inn Choi, Jin-Bong Hwang, Joong-Ho Kwon* and Hyun-Ku Kim

Korea Food Research Institute,

*Department of Food Science and Technology, Kyungpook National University

Abstract

This research was attempted to prove suppressing effect of medicinal plants on the intestinal absorption of toxic heavy metals. In vitro study was performed by membrane filtration considering intestinal absorption conditions. From drinking water contaminated singly with 10 and 50 times level of water quality standard for heavy metals, the removal ratio of lead was 40~60% by *Chicorium intybus*, *Angelica acutiloba* and *Ganoderma lucidum*. And the removal ratio of cadmium was 20~40%. The removal ratio of lead contaminated with both was 30~50% by every sample similarly, the removal ratio of cadmium was 10~30%. The removal ratio of *Angelica acutiloba* was more higher than *Chicorium intybus* and *Ganoderma lucidum*. Considering the extraction conditions of samples, 70°C, 2 min conditions were higher than 95°C, 10 min conditions, the removal ratios of heavy metals were similar. And the membrane filter permeated the material under 500 mw selectively, so the final filtrate could regard as passive transport in intestinal absorption. In conclusion, this research exhibited that the medicinal plants beverages have a suppressing effect on intestinal absorption of lead and cadmium in drinking water.

Key words: medicinal plants, heavy metals, membrane filtration

서 론

환경에 존재하는 중금속은 주로 식수, 식품을 통한 섭취 및 대기에 오염되어 인체에 들어오게 된다⁽¹⁾. 중금속이 체내로 들어오면 13~16년의 반감기를 가지고 장기간 체내에 축적되어^(2,3) 금속을 포함하는 여러 효소의 활성을 저하시키고 뼈, 신장, 간에 만성 중독증세를 유발하며^(4,5) 다른 중금속 또는 무기질과 상호작용하여 동물의 성장을 저해한다고 보고되고 있다^(6,7). 한편 최근 환경오염이 심각해짐에 따라 우리가 상용하는 음용수 중의 중금속 오염도 심각한 상황에 이르고 있는 것이 사실이다.

치커리, 당귀, 영지버섯은 주로 강원도 지방에서 생산되는 생약재로서 예로부터 우리 조상들은 화채나

수정과 등의 음료를 가정에서 제조해 사용해 왔으며 그 외에도 고유의 음료로써 차잎을 우려마시는 녹차와 차잎대신 곡류, 과실류 및 화근피류를 비롯한 다양한 전통 대용차를 애용해 왔고⁽⁸⁾ 이러한 음료소재로 치커리, 당귀, 영지버섯도 이용되고 있다⁽⁹⁾. 또한 이러한 음료소재에는 차의 독특한 맛을 주는 polyphenol계 화합물인 탄닌이 함유되어 있으며⁽¹⁰⁾ 이 성분은 chelation에 의해 금속이온과 결합하는 특성을 가진다고 보고되고 있다⁽¹¹⁾.

따라서 본 연구에서는 생약재를 차로 제조해 음용했을 경우 이 생약재가 음용수에 오염된 중금속을 흡착하여 제거시킴으로써 장내 흡수 억제의 생리적 작용을 갖는지 살펴보기 위하여 수행되었다. 따라서 *in vitro* 방법을 이용하여 카드뮴 및 납이 음용수 수질기준의 일정배수로 오염된 음용수에 치커리, 당귀, 영지버섯과 같은 생약재를 첨가하여 여과 및 투과막을 통과시킨 후 잔존하는 중금속을 측정하여 제거효과를

살펴보았다.

재료 및 방법

실험재료 및 시약

본 실험에서 사용한 치커리(*Chicorium intybus*)는 강원도 인제군 소재 설악 치커리에서 전조후 볶음 처리된 것을 구입하여 사용하였으며, 당귀(*Angelica acutiloba*)와 영지(*Ganoderma lucidum*)는 경동시장에서 구입하여 사용하였다. 중금속 표준용액은 昭和化學(일본)의 시약으로 납은 Pb(NO₃)₂로, 카드뮴은 CdSO₄의 형태로 0.1 N HNO₃에 용해된 것을 사용하였으며 기타 일반 시약은 특급시약을 사용하였다.

여과에 의한 중금속 제거

치커리, 당귀, 영지시료 각각 2g에 일정 농도로 오염시킨 음용수 100 mL를 넣고 정해진 온도의 water bath에서 일정시간 동안 추출시킨 후 Whatman No. 2여과지로 여과하였다. 음용수 중 중금속의 농도는 단독으로 오염시켰을 경우 음용수 수질기준인 Pb 0.1 ppm, Cd 0.01 ppm의 10배 및 50배의 농도를 취하여 Pb는 각각 1, 5 ppm으로, Cd은 0.1, 0.5 ppm으로 오염시켰다. 그리고 혼합오염의 경우는 수질기준의 50배 농도를 사용하여 Pb 5 ppm+Cd 0.5 ppm으로 오염시켜 실험을 실시하였으며 시료를 추출하는 조건은 일반적으로 다류 음용조건인 70°C에서 2분간 추출하는 조건과 95°C에서 10분간 추출하는 조건으로 실시하였다.

막투과에 의한 중금속 제거

여과지를 통과한 여액 중 25 mL를 취하여 다시 Amicon ultrafiltration cell (Amicon Division, W. R. Grace & Co., USA)을 이용한 막투과를 실시하였다. 즉 ultrafiltration cell에 molecular weight cutoff가 500인 diaflo ultrafiltration membrane을 깔고 위의 여과과정을 거친 여액을 넣은 다음 cap을 닫아 cell을 고정시킨 후 N₂ 가스로 15 psi의 압력을 가하면서 분자량 500이하의 물질을 통과시켰다.

여액의 중금속 분석

위의 장치를 통과한 여액의 정량을 위해서는 Darryl과 Donald⁽¹²⁾의 방법에 따라 처리하였으며 inductively coupled plasma atomic emission spectrometer (ICP-AES: Jobin Yvon JY38 plus, France)를 이용하여 그 농도를 각각 측정하였다. 즉 시료 10 mL을 자기도가니에 넣고 70°C oven에서 overnight시킨 후 전열기에서 H₂O

Table 1. Operating conditions of ICP-AES for heavy metal analysis

Power	1 kw for aqueous
Nebulizer pressure	3.5 bars for meinhard type C
Aerosol flow rate	0.3 L/min
Sheath gas flow	0.3 L/min
Cooling gas	12 L/min
Wavelength Pb	220.353 nm
Cd	214.438 nm

10 mL를 넣고 HNO₃ (1+1) 3 mL를 가하여 120°C에서 휘발시켰고 이를 방냉하여 회화로에 옮기고 온도를 서서히 올려 500°C에서 2시간 동안 회화시켰다. 그리고 HCl (1+1) 10 mL를 가한 다음 잘 녹여서 50 mL 정용 플라스크에 옮겨 탈이온수로 표선을 채운 후 여과하여 분석용액으로 사용하였다. 중금속의 농도를 분석한 ICP-AES의 작동조건은 Table 1과 같다. 그리고 시약 blank는 위의 분석과정을 거친 다음 ICP-AES로 Pb와 Cd의 농도를 측정하고 시료에서 각각의 농도를 빼주어 제거효과를 계산하였다.

결과 및 고찰

중금속 단독오염시 제거효과

음용수 중에 Pb 또는 Cd이 음용수 수질기준의 10배 또는 50배로 오염되었을 때 여기에 치커리, 당귀, 영지를 넣고 70°C에서 2분간, 또는 95°C에서 10분간 각각 추출시킨 경우 Pb 또는 Cd이 차성분에 흡착되어 제거되는 비율을 살펴본 결과는 Table 2~5와 같다. 납의 경우 치커리, 당귀, 영지버섯이 제거효과의 큰 차이 없이 비슷한 경향을 나타내었는데 1 ppm으로 오염된 경우 치커리는 제거율이 46~56%를 나타내었고 당귀

Table 2. Removal of lead from drinking water by tea beverages (initial concentration, 1 ppm Pb)

Tea beverages	Pb concentration (ppm)		removal ratio (%)
	Filtrate	Ultrafiltrate	
70°C/ 2 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	0.47	0.18	56
<i>Angelica acutiloba</i>	0.48	0.14	60
<i>Ganoderma lucidum</i>	0.48	0.23	51
Control	0.86	0.74	0(26) ¹⁾
95°C/10 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	0.35	0.24	46
<i>Angelica acutiloba</i>	0.28	0.18	52
<i>Ganoderma lucidum</i>	0.27	0.19	51
Control	0.73	0.70	0(30)

¹⁾Data in parentheses are the removal ratio due to losses in the filtration and ultrafiltration processes.

Table 3. Removal of lead from drinking water by tea beverages (initial concentration, 5 ppm Pb)

Tea beverages	Pb concentration (ppm)		removal ratio (%)
	Filtrate	Ultrafiltrate	
70°C/2 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	1.66	0.57	22
<i>Angelica acutiloba</i>	2.14	0.43	24
<i>Ganoderma lucidum</i>	1.91	0.45	24
Control	2.81	1.63	0(67)
95°C/10 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	1.48	0.81	26
<i>Angelica acutiloba</i>	1.68	0.90	24
<i>Ganoderma lucidum</i>	1.93	1.11	20
Control	3.05	2.08	0(58)

Table 4. Removal of cadmium from drinking water by tea beverages (initial concentration, 0.1 ppm Cd)

Tea beverages	Cd concentration		removal ratio (%)
	Filtrate	Ultrafiltrate	
70°C/ 2 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	0.042	0.021	37
<i>Angelica acutiloba</i>	0.053	0.013	45
<i>Ganoderma lucidum</i>	0.050	0.024	34
Control	0.070	0.058	0(42)
95°C/10 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	0.040	0.019	41
<i>Angelica acutiloba</i>	0.026	0.009	51
<i>Ganoderma lucidum</i>	0.060	0.030	30
Control	0.070	0.060	0(40)

는 52~60%, 영지버섯은 51%를 나타내었으며, 수질기준의 50배로 오염된 경우에 치커리는 22~26%가 제거되었으며 당귀는 24%, 영지버섯은 20~24%가 제거되었다. 음료의 추출조건인 70°C, 2분과 95°C, 10분을 비교해보면 70°C에서 2분의 경우가 95°C, 10분의 경우보다 제거효과가 높음을 알 수 있었는데 특히 5 ppm으로 오염된 경우에는 70°C, 2분의 경우보다 95°C에서 10분 추출한 경우의 제거효과가 급격히 낮아짐을 알 수 있었다. 흥 등의 연구⁽¹³⁾에 따르면 반응초기에 흡착이 빠르게 진행되어 추출시간 10분 이내에 최대흡착률의 90%에 이르렀으며 추출온도는 40°C에서 납과 카드뮴이 각각 74%와 80%의 최대흡착률에 도달되었음을 보고한 바 있는데 본 연구에서도 추출시간과 온도를 증가시켜도 흡착률의 비례적 증가는 나타나지 않았으며 이에 따른 제거율도 감소된 결과를 보여주었다.

카드뮴에 대한 중금속 제거 실험에서는 치커리나 영지버섯보다 당귀의 제거효과가 더 높은 경향을 보였는데 0.1 ppm으로 오염된 경우 치커리와 영지버섯

Table 5. Removal of cadmium from drinking water by tea beverages (initial concentration, 0.5 ppm Cd)

Tea beverages	Cd concentration (ppm)		removal ratio (%)
	Filtrate	Ultrafiltrate	
70°C/ 2min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	0.383	0.225	12
<i>Angelica acutiloba</i>	0.247	0.144	28
<i>Ganoderma lucidum</i>	0.314	0.173	22
Control	0.410	0.283	0(43)
95°C/10 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	0.284	0.119	28
<i>Angelica acutiloba</i>	0.214	0.117	29
<i>Ganoderma lucidum</i>	0.283	0.112	30
Control	0.373	0.260	0(48)

은 각각 37~41%와 30~34%의 제거효과를 나타내었고 당귀는 이보다 높은 45~51%의 제거율을 보여주었다. 0.5 ppm으로 오염된 경우는 치커리는 12~28%, 영지버섯은 22~30%가 제거되었고 당귀는 28~29%가 제거됨을 알 수 있었다. 음료 추출조건을 비교해보면 중금속의 농도와 시료의 종류에 따라 약간 차이가 있기는 하지만 전반적으로 비슷한 경향을 보여주었다. 중금속의 농도별 제거효과의 차이를 살펴보면 고농도로 오염된 경우가 저농도로 오염된 경우보다 제거효과가 훨씬 낮게 나타남을 관찰할 수 있었는데 중금속에 대한 녹차잎의 흡착능 연구⁽¹⁴⁾에서 중금속 농도가 증가할수록 흡착량은 증가하는 반면 흡착률은 감소한다고 지적한 바 있어 본 연구와 비슷한 경향을 보여주고 있음을 알 수 있었다.

중금속 혼합오염시 제거효과

음용수수증의 Pb와 Cd을 모두 음용수 수질기준의 50배인 Pb 5 ppm과 Cd 0.5 ppm으로 혼합오염시켰을 때 치커리, 당귀, 영지를 넣고 추출하여 여과시킨 경우의 제거효과는 Table 6, 7과 같다.

납의 경우 치커리에서 35~43%의 제거효과를 나타내었고, 당귀는 29~50%를, 영지버섯은 30~47%의 제거효과를 보여주고 있어 시료간 큰 차이는 보이지 않고 있으나 추출조건에 따른 제거율을 비교해보면 이전의 단독오염 실험과 마찬가지로 70°C, 2분에서의 제거효과가 95°C, 10분의 제거효과보다 크게 나타나 고농도로 오염되었을 때 제거효과가 감소됨을 알 수 있었다. 카드뮴도 이전의 단독오염 실험과 마찬가지로 추출조건에 뚜렷한 차이를 보이지 않았다. 또한 카드뮴의 경우에는 치커리나 영지버섯의 7~15%보다 당귀에서 21~29%로 더 뛰어난 제거효과를 보여주었는

Table 6. Removal of lead from drinking water contaminated with lead and cadmium (initial concentration, 5 ppm Pb+0.5 ppm Cd)

Tea beverages	Pb concentration (ppm)		removal ratio (%)
	Filtrate	Ultrafiltrate	
70°C/ 2min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	1.94	1.16	43
<i>Angelica acutiloba</i>	1.98	0.82	50
<i>Ganoderma lucidum</i>	1.61	0.96	47
Control	3.49	3.31	0(34)
95°C/10 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	0.73	0.61	35
<i>Angelica acutiloba</i>	1.22	0.89	29
<i>Ganoderma lucidum</i>	2.18	0.83	30
Control	2.74	2.33	0(53)

Table 7. Removal of cadmium from drinking water contaminated with lead and cadmium (initial concentration, 5 ppm Pb+0.5 ppm Cd)

Tea beverages	Cd concentration (ppm)		removal ratio (%)
	Filtrate	Ultrafiltrate	
70°C/2 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	0.263	0.219	15
<i>Angelica acutiloba</i>	0.259	0.188	21
<i>Ganoderma lucidum</i>	0.393	0.262	7
Control	0.398	0.293	0(41)
95°C/10 min. extraction			
<i>Chicorium intybus</i>	0.261	0.196	13
<i>Angelica acutiloba</i>	0.239	0.117	29
<i>Ganoderma lucidum</i>	0.218	0.189	14
Control	0.373	0.260	0(48)

데 전체적으로 중금속의 단독오염의 경우보다는 그 효과가 낮은 양상을 보여주고 있는데 이는 두 금속 원소 상호간의 시료성분 및 여과막에 대한 흡착 경합에 기인하는 것으로 여겨지며 이 두 원소와 시료간의 관계에 관한 후속연구가 요구된다고 하겠다.

투과막에 대한 중금속의 흡착

본 실험 수행결과 여과지 및 투과막에도 상당량의 중금속이 흡착되어 제거된다는 사실을 알 수 있었으며 그 결과는 Fig. 1과 같다. 납은 단독오염의 경우 추출액 중에 존재하는 중금속의 26~58%가 감소하였고 카드뮴은 40~48%가 감소하였는데 오염된 중금속의 농도가 높을수록, 음료추출온도가 높을수록 더 많은 중금속이 흡착되었음을 관찰할 수 있었다. 이러한 결과는 투과막이 중금속에 흡착되기 쉬운 성질로 이루어져 있기 때문으로 추측되며 최 등⁽¹⁵⁾의 연구에서도

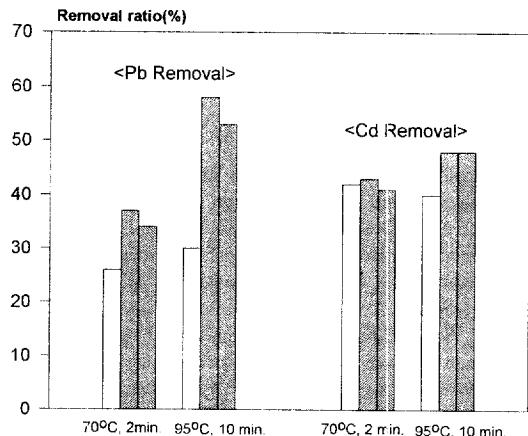
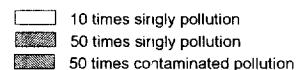


Fig. 1. Removal ratio of heavy metals to filtration and membrane filtration.

유사한 결과를 보여주고 있다. 또한 여과지보다는 투과막에 상당한 양의 중금속이 흡착되었는데 조밀한 투과막을 통과하지 못한 중금속의 양이 많음을 알 수 있었다. 따라서 본 실험에서는 위와 같은 결과를 고려하여 중금속 제거율을 계산하였다.

요약

음용수 중에 납과 카드뮴이 오염되었을 때 치커리, 당귀, 영지버섯의 중금속의 장내 흡수억제 효과가 있는지를 알아보기 위해 장내 흡수 조건을 고려한 투과막을 이용하여 *in vitro* 실험을 실시하였다. 납과 카드뮴이 음용수 수질기준의 10배 또는 50배로 오염된 음용수에서 단독오염의 경우 납은 치커리, 당귀, 영지버섯에서 40~60%의 제거효과를 보였고 카드뮴의 경우는 치커리, 당귀, 영지버섯에서 20~40%의 제거효과를 나타내었다. 납과 카드뮴이 혼합오염된 경우에 납은 치커리, 당귀, 영지버섯의 세 시료에서 비슷하게 30~50%의 제거효과를 나타냈으며 카드뮴은 10~30%의 제거효과를 보여주었는데 치커리, 영지버섯에 비해 당귀가 높은 제거효과를 보여주었다. 추출조건별로 비교해보면 70°C, 2분 추출조건의 경우가 95°C, 10분의 경우보다 더 제거효과가 높았음을 관찰할 수 있었다. 한편 여과지 및 투과막에도 상당량의 중금속이 흡착되어 제거된다는 사실을 알 수 있었는데 오염된 중금속의 농도가 높을수록, 음료 추출온도가 높을수록 더 많은 중금속이 흡착되었음을 관찰할 수 있었다. 이

러한 결과는 투과막이 중금속에 흡착되기 쉬운 성질로 이루어져 있기 때문인 것으로 추측되며 치커리, 당귀, 영지는 음용수중에 오염된 중금속의 장내흡수 억제 효과가 있음을 알 수 있었다.

문 헌

1. Foukes, E.C., Bernard, A. and Lawerys, R.: Cadmium, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, Germany, p.135 (1986)
2. Rhee, S.J., Kim S.O. and Choe, W.K.: Effect of cadmium dose injection on peroxidative damage in rat liver (in Korean). *J. Korean Soc. Food Sci. Nutr.*, **21**, 601-607 (1992)
3. Jung, S.Y., Rhee, S.J. and Yang, J.A.: Effect of dietary vitamin E levels on lipid peroxidation and enzyme activities of antioxidative system in brain of cadmium administered rats (in Korean). *J. Korean Soc. Food Sci. Nutr.*, **25**, 575-580 (1996)
4. Rabinowits, M.B. and Weatherill, G.W.: Lead metabolism in the normal human; stable isotope studies. *Science*, **182**, 275 (1973)
5. Choi, S.I., Lee, J.H. and Lee, S.R.: 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 (1994)
6. Schroeder, H.A. and Vinton, W.H.: Hypertension induced in rats by small doses of cadmium. *Am. J. Physiol.*, **202**, 515-518 (1962)
7. Nordberg, M.: General aspects of cadmium: transport, uptake and metabolism by the kidney. *Inviron. Health Persp.*, **54**, 13-20 (1984)
8. 심상룡 : 약초와 생즙, 창조사 (1980)
9. Kim, Y.T., Yoon, Y.J. and Lee, K.W.: Studies on the constituents of the chicory root (in Korean). *Korean J. Food Sci. Technol.*, **10**, 258-262 (1978)
10. Oh, S.L., Kim, S.S., Min, B.Y. and Chung, D.H.: Composition of free sugars, free amino acids, non-volatile organic acids and tannins in the extracts of *L. chinensis* M., *A. acutiloba* K., *S. chinensis* B. and *A. sessiliflorum* S. (in Korean). *Korean J. Food Sci. Technol.*, **22**, 76-81 (1990)
11. Lee, J.H.: Studies on content of phenolic substances in plant food and their physiological effects *in vitro*. Ph. D. Thesis, Ewha Woman Univ., Seoul, Korea (1993)
12. Darryl, M.S. and Donald, E.C.: Method of analysis for nutrition labeling. p.160 (1993)
13. Hong, S.Y., Kwon, E.Y., Lee, D.S., Kim, M.K. and Jeon, H.O.: Adsorptivities of green-tea on heavy metallic ions in aqueous solutions (in Korean). Hanyang Univ., Research Institute for Environmental Sciences, *Bulletin of Environmental Sciences*, Vol. 13, p.19-24 (1992)
14. Jeon, H.O.: Adsorptivities of Cd(II), Cu(II) and Pb(II) ions in water by green-tea. M.S. Thesis, Hanyang Univ., Seoul, Korea (1991)
15. Choi, S.I., Lee, J.H. and Lee, S.R.: Effect of green tea beverage on the removal of cadmium and lead by membrane filtration (in Korean). *Korean J. Food Sci. Technol.*, **26**, 740-744 (1994)

(1997년 3월 6일 접수)