

宁夏道地黄芪重金属残留特征及污染评价

李彩虹, 王彩艳, 王晓静, 马 芸

(农业部枸杞产品质量监督检验测试中心, 宁夏 银川 750002)

摘 要:以宁夏不同产区黄芪及种植土壤为研究对象,采用原子吸收法和原子荧光法测定其中的铅、镉、砷、汞、铜5种重金属元素含量,研究了种植土壤重金属对黄芪重金属残留特征及污染风险的影响。结果表明:黄芪中5种重金属均有不同程度的检出但含量很低;黄芪中Hg与Cu含量之间呈显著负相关关系,Pb和Cd含量之间呈显著正相关关系;土壤中Cu与Pb、As、Cd含量之间,Pb和Cd、As含量之间呈极显著正相关关系,Cd和As、Hg含量之间呈显著正相关关系;Cu含量在黄芪和土壤之间呈显著正相关性。采用单项污染指数法和综合污染指数法对黄芪重金属污染风险进行评价,宁夏道地黄芪无污染。

关键词:黄芪;重金属;残留特征;相关关系;污染风险评价

中图分类号:S 567.23⁺9 **文献标识码:**A **文章编号:**1001-0009(2016)21-0171-04

中药材黄芪具有补气固表,利尿托毒,排脓,敛疮生肌的功效^[1]。现代医学研究认为黄芪多糖具有增强机体免疫力,抗疲劳、抗菌、抗衰老、抗病毒、镇静、镇痛和保护肾脏的作用,能明显改善脂肪及糖代谢,调节血糖、血压^[2-3]。黄芪多糖的显著抗癌作用引起医药界的广泛关注,注射用黄芪多糖是目前较理想的安全有效的抗肿瘤用药^[4]。然而,临床研究表明,部分中药重金属成分是导致动物急性肝损伤的一个原因^[5-6],中药重金属含量超标已经成为中药发展的主要制约因素,是中药国际化的障碍^[7]。因此,规范中药材重金属含量是保证中药材品质的关键。

宁夏是国家西北道地中药材的重要产地之一,发展道地中药材产业具有得天独厚的自然环境和资源条件,是国家科技部等6部委首批在西北地区的“国家中药现代化科技产业种植基地”^[8]。近年来,对宁夏道地黄芪的研究多集于有效成分、栽培技术等方面,质量安全性研究较少,重金属残留特征及安全性评价尚鲜见报道。该研究通过对宁夏道地黄芪及种植土壤中铅、砷、镉、汞、铜(Pb、As、Cd、Hg、Cu)5种重金属元素检测,分析重金属在中药材与土壤中的残留特征及相关性,并对宁夏

道地黄芪重金属污染风险进行评价,这对指导中药材安全生产,提升中药材质量,打造优势特色产业,具有积极作用。同时,还可为宁夏农业环境管理与土壤修复提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 试验材料

以宁夏中部干旱风沙区、南部六盘山阴湿区两大黄芪主产区土壤及3年生的黄芪(直播)为供试材料。

试验设备:双道原子荧光光度计(AFS-930 北京吉天仪器有限公司);砷、汞高性能空心阴极灯(北京有色金属研究总院);原子吸收分光光度计(220FS/220Z 美国瓦里安仪器公司);微波消解仪(MARS5 美国 CEM 公司);DigiBlock 消解仪(莱伯泰科有限公司);电子天平(AL204,瑞士 METTLER TOLEDO 公司);纯水机(美国 Millipore 公司);所用玻璃器皿均用硝酸溶液(1+1)浸泡24 h以上,再用水冲洗干净。

1.2 试验方法

1.2.1 土样采集 于2015年8—10月在宁夏中部干旱风沙区盐池县(青山乡、惠安堡镇)、同心县(下马关镇、预旺镇)及南部六盘山阴湿区隆德县(联财镇、温堡乡)采集土样。每个乡镇布3个监测点,每个监测点下设3个取样点,即每个试验乡镇9个取样点。供试土壤采用多点采集的混合样品,即对每块土壤以‘S’型采样法取5个点,在各点上取0~20、20~40 cm 2层土壤样品,现场均匀混合后采用四分法弃去多余土壤,保留1 kg于塑料袋中,贴好标签后带回实验室,样品经室内自然风干后,研磨至粉末状,过100目(孔径0.149 mm)尼龙筛,

第一作者简介:李彩虹(1979-),女,本科,助理研究员,现主要从事农产品质量标准与检测技术等研究工作。E-mail:lch.6868@163.com.

责任作者:马芸(1967-),女,本科,高级实验师,现主要从事农产品质量标准与检测技术等研究工作。E-mail:Xia0113@126.com.

基金项目:宁夏自然科学基金资助项目(NZ15271)。

收稿日期:2016-07-25

保存在密封塑料袋中,贴上标签备用。土壤基本信息见表 1。

表 1 种植土壤基本信息

产地 Origin	海拔 Altitude/m	有机质含量 Organic matter content/(g · kg ⁻¹)	pH
盐池青山乡	1 550	9.96	7.94
盐池惠安堡镇	1 460	10.7	8.12
同心下马关镇	1 360	11.9	8.31
同心预旺镇	1 500	12.8	8.09
隆德联财镇	1 770	14.3	7.85
隆德温堡乡	1 930	13.5	7.61

1.2.2 黄芪样品采集 相应土壤采样点采集健康、无病虫害的 3 年生黄芪样本,除去表面泥土、须根置于室内自然风干,再经 55 ℃、48 h 烘干,粉碎至细粉末状,贴上标签,保存在密封塑料袋中备用。

1.3 项目测定

黄芪中重金属含量定量测定依照食品检测方法,依据标准分别为砷:GB/T 5009.11-2003;汞:GB/T 5009.17-2003;铅:GB/T 5009.12-2003;镉:GB/T 5009.15-2003;铜:GB/T 5009.13-2003。土壤中重金属的检测依据标准分别为砷:GB/T 22105.2-2008;汞:GB/T 22105.1-2008;铅:GB/T 17140-1997;镉:GB/T 17141-1997;铜:GB/T 17138-1997。

1.4 数据分析

采用 DPS 统计软件对试验数据进行分析。

2 结果与分析

2.1 宁夏不同产区黄芪和土壤中重金属含量特征

2.1.1 不同产区黄芪中重金属残留特征 宁夏产黄芪中 Cu 含量在 3.30~7.54 mg · kg⁻¹,平均值为 5.22 mg · kg⁻¹,Pb 含量在 0.326~1.787 mg · kg⁻¹,平均值为 0.536 mg · kg⁻¹,Cd 含量在 0.004 4~0.032 3 mg · kg⁻¹,平均值为 0.013 7 mg · kg⁻¹,As 含量在 0.094~0.545 mg · kg⁻¹,平均值为 0.204 mg · kg⁻¹,Hg 含量在 0.001 12~0.004 25 mg · kg⁻¹,平均值为 0.002 62 mg · kg⁻¹。从图 1 可知,黄芪中各重金属元素含量 Cu>Pb>As>Cd>Hg。由表 2 可知,不同产地黄芪中同一元素含量差异性显著,其中 Cu、Pb 含量隆德县产最高,盐池县次之,同心产黄芪中 Cu、Pb 含量最低;Cd 含量盐池产最高,隆德产次之、同心最低;As 含量隆德产最高,同心产次之,盐池产最低。Hg 含量盐池和同心产较高,隆德产较低。

2.1.2 不同产区种植土壤中重金属含量特征 宁夏地区黄芪产地土壤中 Cu 含量在 12.9~26.6 mg · kg⁻¹,平均值为 21.4 mg · kg⁻¹,Pb 含量在 15.1~19.4 mg · kg⁻¹,平均值为 17.4 mg · kg⁻¹,Cd 含量在 0.206~0.428 mg · kg⁻¹,平均值为 0.323 mg · kg⁻¹,As 含量在 8.22~

13.4 mg · kg⁻¹,平均值为 11.7 mg · kg⁻¹,Hg 含量在 0.012 1~0.079 6 mg · kg⁻¹,平均值为 0.045 9 mg · kg⁻¹。不同产区黄芪种植土壤中重金属含量状况分布见图 2。从图 2 可知,黄芪种植土壤中各重金属元素含量 Cu>Pb>As>Cd>Hg。由表 3 可知,不同产区土壤中同一元素含量差异显著,5 种重金属元素含量隆德县均最高,盐池县相对较低,分析原因为隆德县黄芪产地多为水田,近年来农业灌溉用水受当地工业污染较严重,导致农田重金属含量增加。

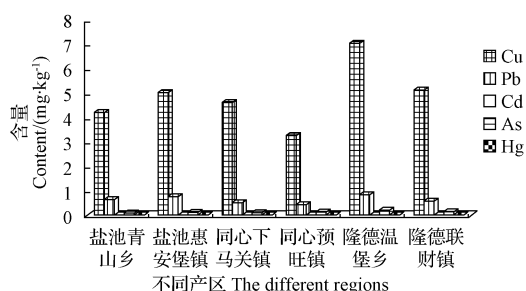


图 1 不同产区黄芪中各重金属元素平均含量

Fig. 1 Distribution of each heavy metal element average content in the different regions Radix Astragali

表 2 不同产地黄芪中重金属平均含量

regions Radix Astragali	mg · kg ⁻¹				
	Cu	Pb	Cd	As	Hg
盐池青山乡	4.24bBC	0.677cB	0.016 7bcB	0.094dC	0.002 8aA
盐池惠安堡镇	5.02bB	0.787bA	0.032 3aA	0.134bcBC	0.002 4aA
同心下马关镇	4.64bB	0.540cC	0.013 6bcdB	0.117cdBC	0.002 6aA
同心预旺镇	3.30cC	0.454dD	0.007 4cdB	0.144bcB	0.002 8aA
隆德县温堡乡	7.05aA	0.864aA	0.017 8bB	0.245aA	0.002 5aA
隆德联财镇	5.16bB	0.614dBC	0.009 5cdB	0.151bB	0.001 5bB

注:*表示相关性达显著水平($P<0.05$),**表示相关性达极显著水平($P<0.01$)。下同。

Note:* shows significant difference ($P<0.05$),** shows extremely significant difference($P<0.01$). The same below.

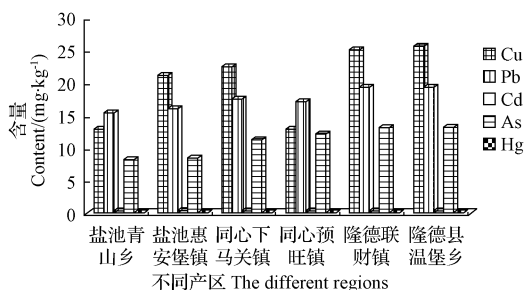


图 2 不同产区黄芪土壤中重金属平均含量

Fig. 2 Distribution of each heavy metal element average content in the different regions soil

2.2 重金属各元素含量之间的相关性分析

2.2.1 黄芪中各重金属元素含量之间的相关性分析 表 4 黄芪中各重金属元素含量之间的相关性分析表明,黄芪

表 3 不同产区黄芪种植土壤中各重金属元素平均含量

Table 3 Average content of heavy metal element in the different regions soil of planting Radix Astragali $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$

	Cu	Pb	Cd	As	Hg
盐池青山乡	12.98dD	15.4dC	0.274bB	8.23dD	0.015 4fE
盐池惠安堡镇	21.22cC	16.1cC	0.407aA	8.48dD	0.039 0bA
同心下马关镇	22.56bB	17.6bB	0.206bB	11.30cC	0.020 6eD
同心预旺镇	12.91dD	17.2bB	0.269bB	12.20bB	0.027 4dC
隆德县联财镇	25.19aA	19.4aA	0.396aA	13.20aA	0.042 2aA
隆德县温堡乡	25.69aA	19.4aA	0.426aA	13.30aA	0.034 2cB

表 4 黄芪中各重金属元素含量之间相关系数

Table 4 Correlation coefficient between each heavy metal element content in Radix Astragali

	Cu	Pb	Cd	As	Hg
Cu	—				
Pb	0.11	—			
Cd	0.00	0.57*	—		
As	0.47	0.42	0.42	—	
Hg	-0.48*	0.01	-0.02	-0.23	—

中 Hg 与 Cu 含量之间呈显著负相关关系($r=-0.48^*$), Pb 和 Cd 含量之间呈显著正相关关系($r=0.57^*$),其它各元素含量之间均无显著相关性。

2.2.2 土壤中各重金属含量之间的相关性分析 表 5 土壤中各重金属元素含量之间的相关性分析表明,黄芪种植土壤中 Cu 与 Pb、As、Cd 含量之间存在极显著正相关关系($r=0.89^{**}$, $r=0.95^{**}$, $r=0.66^{**}$); Pb 与 Cd、As 含量之间存在极显著正相关关系($r=0.65^{**}$, $r=0.81^{**}$); Cd 和 As、Hg 含量之间存在显著正相关关系($r=0.51^*$, $r=0.72^*$),其它各元素含量之间相关性不显著。

表 5 黄芪种植土壤中各重金属元素含量之间的相关系数

Table 5 Correlation coefficient between each heavy metal element content in soil of planting Radix Astragali

	Cu	Pb	Cd	As	Hg
Cu	—				
Pb	0.89**	—			
Cd	0.66**	0.65**	—		
As	0.95**	0.81**	0.51*	—	
Hg	0.38	0.26	0.72*	0.36	—

2.2.3 重金属含量在中药材与土壤之间的相关性 表 6 相关性分析结果表明,Cu 含量在黄芪和种植土壤中呈显著正相关关系($r=0.87^*$),其它元素 Pb、Cd、As、Hg 相关关系不显著。

2.3 宁夏道地黄芪重金属污染风险评价

依据《药用植物及制剂进出口绿色行业标准》中规定重金属残留限量:重金属总量 $\leq 20 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,其中铅 $\leq 5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,砷 $\leq 2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,镉 $\leq 0.3 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,汞 $\leq 0.2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,铜 $\leq 20 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 为标准,采用单项

污染指数法和综合污染指数法对黄芪重金属污染风险进行评价。根据污染指数 P 值的变化划分为 5 个污染等级:安全, $P \leq 0.7$;警戒级, $0.7 < P \leq 1$;轻度污染, $1 < P \leq 2$;中度污染, $2 < P \leq 3$;重污染, $P > 3$ 。宁夏不同产区黄芪污染指数及评价见表 7。

宁夏道地黄芪中 5 种重金属均有检出,但含量都低于《药用植物及制剂进出口绿色行业标准》中规定重金属残留限量。由表 7 可以看出,通过单项污染指数法和综合污染指数法对黄芪重金属污染风险进行评价,单项污染指数和综合污染指数均 ≤ 0.7 ,故宁夏道地黄芪安全、无污染。

表 6 黄芪与种植土壤中各重金属元素含量之间相关系数

Table 6 Correlation coefficient of each heavy metal element content between Radix Astragali and soil

	Cu	Pb	Cd	As	Hg
黄芪	0.87*	0.11	-0.32	0.67	0.44

表 7 不同产地黄芪重金属污染风险评价指数

Table 7 Risk evaluation inde of heavy metal pollution of Radix Astragali in different regions

	单项污染指数					综合污染指数	污染评价
	Single pollution index					Comprehensive pollution index	Pollution assessment
	Cu	Pb	Cd	As	Hg		
盐池青山乡	0.21	0.14	0.056	0.047	0.014	0.16	安全
盐池惠安堡镇	0.25	0.16	0.11	0.067	0.012	0.20	安全
同心下马关镇	0.23	0.11	0.045	0.059	0.013	0.19	安全
同心预旺镇	0.16	0.10	0.024	0.072	0.014	0.18	安全
隆德县联财镇	0.35	0.17	0.059	0.12	0.012	0.27	安全
隆德县温堡乡	0.26	0.12	0.032	0.10	0.010	0.20	安全

3 结论与讨论

根据宁夏道地中药材重金属迁移规律及污染评价研究课题组普查数据可知,宁夏黄芪种植土壤中 5 种重金属元素含量均符合《土壤环境质量标准 GB-15618-1995》二级标准,Pb、As、Hg、Cu 4 种元素和当地土壤地球化学元素背景值相当,达到了土壤环境质量一级标准,监测点土壤中的 Cd 均高于当地土壤地球化学元素背景值,说明宁夏黄芪产区土壤受到 Cd 污染。此外,隆德县产区 5 种重金属含量均高于其他产区,这与当地农业灌溉用水受到污染有关。分析种植土壤中各重金属元素含量之间的相关性,Cu 与 Pb、As、Cd 含量之间,Pb 与 Cd、As 含量之间存在极显著正相关关系;Cd 和 As、Hg 含量之间存在显著正相关关系,其它各元素含量之间相关性不显著。

重金属含量是中药材品质的重要体现,宁夏产黄芪中 5 种重金属元素含量较低,其中 Cd、As 和 Hg 的含量极低,所检样品中没有超标样品,通过单项污染指数法和综合污染指数法对黄芪重金属污染风险进行评价,宁夏产黄芪没有重金属污染风险。分析黄芪中各重金属

元素含量之间的相关性,Hg 与 Cu 含量之间呈显著负相关关系,Pb 和 Cd 含量之间呈显著正相关关系,其它各元素含量之间均无显著相关关系。

分析各重金属元素含量在黄芪和种植土壤之间的相关性,在土壤重金属含量较低时,二者之间只有 Cu 元素含量呈显著正相关关系,其它 4 种元素 Pb、Cd、As、Hg 含量相关关系不显著,说明黄芪对土壤中的 Cu 元素具有较强的富集吸收能力。贾薇^[9]对砂仁、佛手、巴戟天、穿心莲和广藿香 5 种广东地产药材及其生长土壤中 Cu、As、Cd、Pb、Hg 5 种重金属元素的含量相关性分析表明,不同种类的药材对土壤中重金属元素的吸收、积累具有选择性,同一药材的不同部位对各种重金属的富集能力也不同。张丹^[10]研究表明,重金属在从土壤向植物的迁移过程中,不仅与土壤中重金属含量有关,而且还与植物的生长年限、药用部位有关,同时也受到土壤理化性质和重金属种类、存在形态以及共存元素等因素的影响。对药材而言,其中重金属含量的高低,主要取决于 2 个方面:一方面是土壤的性质、土壤中重金属元素含量及各重金属存在形态;另一方面是药材本身对不同重金属元素的选择、积累能力是不同的。开展药材及其土壤中重金属元素的相关性研究对于从源头上控制中药材

重金属限量具有十分重要的指导意义,为进一步完善中药材规范化种植基地的土壤环境质量评价标准提供科学依据。

参考文献

- [1] 国家药典委员会. 中华人民共和国药典[M]. 北京: 中国医药科技出版社, 2015.
- [2] 索贞,任敏,周好田. 黄芪的化学成分及现代药理[J]. 现代医院, 2005, 5(9): 85-86.
- [3] 王艳芳,鲍建材,郑友兰,等. 黄芪的研究概况[J]. 人参研究, 2004 (1): 10-16.
- [4] 姜俊艳,陈旭东,李长坤. 黄芪多糖的用途和提取[J]. 化学工程师, 2013, 97(4): 55-56.
- [5] 任晓非,许建明. 中药导致急性肝损伤临床研究[J]. 安徽医药, 2015, 19(10): 1997-2000.
- [6] 王洪梅. 中药致急性药物性肝损伤的生化指标及病理特点分析[J]. 中国药业, 2015(24): 58-60.
- [7] 党华美,赵欢,何腾兵,等. 贵州不同种植年限钩藤土壤重金属的安全评价[J]. 中药材, 2015, 38(11): 2257-2261.
- [8] 宁夏回族自治区科技厅、自治区中药材产业指导组. 宁夏中药材产业发展规划(2014—2020 年)[Z]. 2014.
- [9] 贾薇. 中药材中重金属的分析方法及其吸收富集特征研究[D]. 广州: 广州中医药大学, 2009: 84-98.
- [10] 张丹. 贵州主要药材基地土壤及中药中污染状况调查研究[D]. 贵阳: 贵州师范大学, 2006: 66-71.

Residual Characteristics and Pollutational Risk Assessment of Heavy Metal in Ningxia Original Radix Astragali

LI Caihong, WANG Caiyan, WANG Xiaojing, MA Yun

(Supervision and Testing Center for Lycium Quality, Ministry of Agriculture, Yinchuan, Ningxia 750002)

Abstract: Taking Radix Astragali in different region of Ningxia and planting soil as the experimental material, lead, cadmium, arsenic, mercury, copper five kinds of heavy metal element content were determined by using atomic absorption, the effect of soil heavy metals on heavy metal residue characteristics of astragalus membranaceus and pollution risk were studied. The results showed that five kinds of heavy metal were detected to varying degrees in Radix Astragali, but the content was very low; it was significantly correlated relationship between Cd and Cu content in the Radix Astragali. It was extremely significant or significant correlation between Cu and Pb, As, Cd content in the soil, between As and Pb, Cd content there was a very significant or significant correlation relationship in the soil; Cu content was significant correlation between Radix Astragali and soil. Radix Astragali was pollution-free production in Ningxia using the single pollution index and comprehensive pollution index evaluate heavy metal pollution risk.

Keywords: Radix Astragali; heavy metal; residual characteristics; correlated relationship; pollutational risk assessment