

# 夏枯草药材和种植土壤中农药及重金属残留分析

陈宇航<sup>1,3</sup>, 郭巧生<sup>1,①</sup>, 张贤秀<sup>1</sup>, 房海灵<sup>1</sup>, 王澄亚<sup>2</sup>

(1. 南京农业大学中药材研究所, 江苏 南京 210095; 2. 广州星群(药业)股份有限公司, 广东 广州 510288;

3. 成都医学院药学院, 四川 成都 610083)

**摘要:** 采用气相色谱及 ICP-AES 法测定了安徽庐江和江苏洪泽 2 个种植基地的土壤和夏枯草 (*Prunella vulgaris* L.) 果穗及全草中有机氯农药及重金属含量, 并根据污染指数和相关标准对土壤及药材的安全性进行了评价。测定结果表明: 来源于 2 个基地的土壤及药材中有机氯农药及重金属含量有明显差异。庐江产果穗和全草中 Pb、Cd、Cu、Cr、As 及 BHC 含量分别为 3.361 和 3.953、0.172 和 0.190、8.258 和 7.722、3.423 和 2.658、0.284 和 0.355、0.003 和 0.004 mg · kg<sup>-1</sup>, Hg 和 DDT 未检出; 洪泽产果穗和全草中 Pb、Cd、Cu、Cr、Hg 及 BHC 含量分别为 2.399 和 1.558、0.155 和 0.111、7.682 和 6.756、4.259 和 3.801、0.077 和 0.102、0.003 和 0.006 mg · kg<sup>-1</sup>, As 未检出, 果穗中也未检出 DDT。庐江基地土壤中 Cd、Cu、Cr、As、Hg、BHC 和 DDT 含量分别为 0.001、12.943、47.417、1.008、0.003、0.003 和 0.002 mg · kg<sup>-1</sup>, Pb 未检出; 洪泽基地土壤中 Pb、Cd、Cu、Cr、As、Hg 和 BHC 含量分别为 3.443、0.002、18.655、63.385、3.701、0.141 和 0.004 mg · kg<sup>-1</sup>, DDT 未检出。比较结果表明: 夏枯草果穗中重金属残留量均高于全草, 但均低于国家限量标准; 土壤中有机氯农药及重金属单项污染指数均小于 1, 且庐江和洪泽基地土壤的综合污染指数分别为 0.286 和 0.399, 因此, 土壤污染等级属安全级且污染水平为清洁级。

**关键词:** 夏枯草; 果穗; 土壤; 有机氯农药; 重金属; 污染指数

中图分类号: S481<sup>+</sup>.8; R282.2 文献标志码: A 文章编号: 1674-7895(2012)02-0060-04

**Analysis on residues of organochlorine pesticides and heavy metals in planted soil and medicinal materials of *Prunella vulgaris*** CHEN Yu-hang<sup>1,3</sup>, GUO Qiao-sheng<sup>1,①</sup>, ZHANG Xian-xiu<sup>1</sup>, FANG Hai-ling<sup>1</sup>, WANG Cheng-ya<sup>2</sup> (1. Institute of Chinese Medicinal Materials, Nanjing Agricultural University, Nanjing 210095, China; 2. Guangzhou Xingqun Pharmaceutical Co., Ltd., Guangzhou 510288, China; 3. College of Pharmaceutical Sciences, Chengdu Medical College, Chengdu 610083, China), *J. Plant Resour. & Environ.* 2012, **21**(2): 60-63

**Abstract:** Contents of organochlorine pesticides and heavy metals in planted soil and spica and whole plant of *Prunella vulgaris* L. from two planting bases of Lujiang in Anhui Province and Hongze in Jiangsu Province were determined by GC and ICP-AES, and safety of soil and medicinal materials of *P. vulgaris* was evaluated according to pollution indexes and relative standards. The determination results show that the contents of organochlorine pesticides and heavy metals in planted soil and medicinal materials have obvious differences between two planting bases. Contents of Pb, Cd, Cu, Cr, As and BHC in spica and whole plant from Lujiang are 3.361 and 3.953, 0.172 and 0.190, 8.258 and 7.722, 3.423 and 2.658, 0.284 and 0.355, 0.003 and 0.004 mg · kg<sup>-1</sup>, respectively, and Hg and DDT are not detected. Contents of Pb, Cd, Cu, Cr, Hg and BHC in spica and whole plant from Hongze are 2.399 and 1.558, 0.155 and 0.111, 7.682 and 6.756, 4.259 and 3.801, 0.077 and 0.102, 0.003 and 0.006 mg · kg<sup>-1</sup>, respectively, and As is not detected and DDT in spica is also not detected. Contents of Cd, Cu, Cr, As, Hg, BHC and DDT in soil of Lujiang are 0.001, 12.943, 47.417, 1.008, 0.003, 0.003 and 0.002 mg · kg<sup>-1</sup>, respectively, and Pb is not detected. Contents of Pb, Cd, Cu, Cr, As, Hg and BHC in soil of Hongze are 3.443, 0.002, 18.655, 63.385, 3.701, 0.141 and 0.004 mg · kg<sup>-1</sup>,

收稿日期: 2011-09-29

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(30772730; 81072986); 国家“重大新药创制”科技重大专项(2009ZX09308-002)

作者简介: 陈宇航(1983—), 男, 四川崇州人, 博士, 讲师, 从事药用植物资源学研究。

①通信作者 E-mail: gqs@njau.edu.cn

respectively, and DDT is not detected. Comparison result shows that heavy metal residue in spica of *P. vulgaris* is higher than that in whole plant, but residues in both are lower than the national standards. Single pollution index of heavy metals and organochlorine pesticides in soil is less than 1, and comprehensive pollution index in soil from Lujiang and Hongze is 0.286 and 0.399, respectively. Therefore, soil of two planting bases is in the safe grade and reaches clean level.

**Key words:** *Prunella vulgaris* L.; spica; soil; organochlorine pesticide; heavy metal; pollution index

随国际市场对植物药需求量的逐年攀升,中药种植业迎来快速发展时期。但目前因缺乏规范指导,致使药材中重金属和农药残留超标,严重阻碍了中药产业的健康发展。药材中残留重金属的毒副作用主要为慢性蓄积性中毒,对人的中枢神经、消化和造血系统均有严重影响,并因此诱发病症<sup>[1-2]</sup>。而农药对人体危害主要表现为神经毒性,有机氯农药 DDT 和 BHC,因具有化学性质稳定、不易挥发、半衰期长等特点,在环境中降解较为缓慢,易导致慢性中毒<sup>[2]</sup>。

夏枯草(*Prunella vulgaris* L.)为常用中药材,以干燥果穗入药,具有清肝明目、消肿散结的功效<sup>[3]263</sup>。20世纪90年代在安徽、河南和江西等地陆续开展了夏枯草人工种植,并逐渐取代野生药材成为市场主流商品,目前,夏枯草主产区集中在安徽庐江及江苏洪泽等地。为确保规范化生产过程中夏枯草药材品质的稳定和有效,有必要对其主产区土壤及药材中有机氯农药及重金属残留量进行对比分析,但目前相关的研究多侧重于本草学<sup>[4-5]</sup>、资源学<sup>[6]</sup>及栽培学<sup>[7-8]</sup>等方面,有关夏枯草药材中重金属及有机氯农药残留的研究尚无报道。为此,作者对安徽庐江和江苏洪泽夏枯草种植基地的土壤及药材中有机氯农药和重金属含量进行分析,在此基础上分析与评价其安全性,以期为夏枯草的规范化种植提供基础数据。

## 1 材料和方法

### 1.1 材料

1.1.1 样品采集及预处理 供试土壤采自安徽庐江和江苏洪泽夏枯草种植基地,pH 6.92 和 pH 7.32。在2个基地中各设5个采样区,每个采样区依棋盘式采样法分别采集耕作层(0~20 cm)土样10个,用四分法取样约2 kg,将土样置于阴凉通风处自然晾干,去除样品中的有机残渣、植株根系及可见侵入体,碾碎后分别过10、60和100目尼龙筛,备用。

于2009年6月夏枯草成熟期在前述的2个种植

基地内分别设置3个采样区,每个采样区随机采集夏枯草植株10株,每一基地共计30株;其中15株去根后保留完整地上部分,另外15株摘取果穗;分别于60℃干燥至恒质量,粉碎、混匀后过筛,备用。

1.1.2 仪器与试剂 采用的仪器主要有 Ethos T 密闭微波消解仪(意大利 Milestone 公司)、Optimal 2100DV 电感耦合等离子体发射光谱仪(美国 Pekin Elmer 公司)和 TRACE GC Ultra 气相色谱分析仪(美国 Thermo 公司)。所用试剂均为国产优级纯或分析纯,符合农药残留和重金属含量检测的要求。

### 1.2 方法

1.2.1 有机氯农药残留量测定 夏枯草全株和果穗以及土壤中有机氯农药含量测定参照 GB/T 14550—2003 和文献[3]附录 IXQ 的方法进行,取样量均为2.0 g,重复3次。

1.2.2 重金属含量测定 土壤和夏枯草全株及果穗中重金属采用 Ethos T 密闭微波消解系统进行消解,并参照文献[9]的方法采用等离子体发射光谱仪(ICP)分析样品中 Pb、Cd、Cu、Cr、As 和 Hg 含量。土壤和植物样品取样量分别为0.3和0.5 g,重复3次。

1.2.3 夏枯草药材安全性评价 参照文献[10]的 WM/T 2—2004 行业标准对夏枯草全株和果穗中重金属及有机氯农药的残留量进行评价。

1.2.4 土壤污染现状评价 采用单项污染指数法<sup>[11]</sup>和综合污染指数法<sup>[12]</sup>对2个种植基地土壤重金属和有机氯农药残留量进行评价。

单项指数  $P_i = C_i/L_i$ , 式中: $C_i$ 为某污染物测定值; $L_i$ 为评价标准值。

综合污染指数法采用内梅罗指数法<sup>[12]</sup>:  $P_{综} = \sqrt{\frac{(P_{ij})_{max}^2 + (P_{ij})_{ave}^2}{2}}$ 。式中: $(P_{ij})_{max}$ 为第j样点中所有污染物中单项污染指数最大值; $(P_{ij})_{ave}$ 为第j样点中所有污染物中单项污染指数平均值。

土壤污染评价参数为 Pb、Cd、Cu、Cr、As 和 Hg 以及总六六六(BHC)和总滴滴涕(DDT);评价标准采

用 NY/T 391—2000 中旱田土壤各项污染物浓度限值<sup>[13]</sup>及 GB 15618—1995 中二级标准总 BHC 和总 DDT 残留量浓度限值<sup>[14]</sup>,并根据综合污染指数进行土壤分级。

### 1.3 数据分析

采用 SPSS 11.5 和 Excel 2003 统计软件对实验数据进行分析处理。

表 1 不同产地夏枯草果穗和全草中重金属和有机氯农药含量的比较<sup>1)</sup>

Table 1 Comparison of contents of organochlorine pesticides and heavy metals in spica and whole plant of *Prunella vulgaris* L. from different locations<sup>1)</sup>

产地 Location	样品 Sample	重金属含量/mg · kg <sup>-1</sup> Content of heavy metal							农药含量/mg · kg <sup>-1</sup> Content of pesticide	
		Pb	Cd	Cu	Cr	As	Hg	合计 Total	BHC	DDT
安徽庐江 Lujiang of Anhui Province	果穗 Spica 全株 Whole plant	3.361 3.953	0.172 0.190	8.258 7.722	3.423 2.658	0.284 0.355	- -	15.498 14.878	0.003 0.004	- -
江苏洪泽 Hongze of Jiangsu Province	果穗 Spica 全株 Whole plant	2.399 1.558	0.155 0.111	7.682 6.756	4.259 3.801	- -	0.077 0.102	14.572 12.328	0.003 0.006	- 0.008

<sup>1)</sup> -: 未检出 Undetected.

草, Hg 与 DDT 均未检出。洪泽产果穗中 Pb、Cd、Cu 和 Cr 含量均高于全草, Hg 和 BHC 含量低于全草, As 均未检出, 果穗中未检出 DDT。总体上看, 夏枯草果穗中重金属总含量均高于全草, 且来源于庐江的果穗及全株中重金属总含量均高于来源于洪泽的样品。

### 2.2 种植地土壤中有机氯农药和重金属含量分析

安徽庐江和江苏洪泽种植基地土壤中重金属和有机氯农药含量及污染指数见表 2。2 个基地土壤重金属中均为 Cr 含量最高, 其次为 Cu 含量, 但洪泽基地土壤重金属含量总体上均高于庐江基地, 特别是庐江基地土壤中未检出 Pb, 而洪泽基地土壤中 Pb 含量高达 3.443 mg · kg<sup>-1</sup>; 庐江基地土壤中 Hg 含量仅为 0.003 mg · kg<sup>-1</sup>, 而洪泽基地土壤中 Hg 含量为前者的 47 倍。庐江基地土壤中均检出 BHC 和 DDT, 而洪泽基地土壤中仅检出 BHC, 未检出 DDT。从污染指数看, 庐江基地土壤重金属及有机氯农药的各单项污染指数均低于洪泽基地, 其综合污染指数也低于后者。

## 3 讨论和结论

### 3.1 种植地土壤环境质量与药材安全性

依据 NY/T 391—2000 及 GB 15618—1995 的限量标准(Cd、Hg、As、Pb、Cr、Cu、总 BHC 和总 DDT 分别小于或等于 0.30、0.30、20.00、50.00、120.00、60.00、

## 2 结果和分析

### 2.1 全株及果穗中有机氯农药和重金属含量分析

安徽庐江和江苏洪泽产夏枯草果穗及全草中重金属和有机氯农药含量见表 1。庐江产果穗中 Cu 和 Cr 含量高于全草, Pb、Cd 和 As 及 BHC 含量低于全

表 2 夏枯草产地土壤中有机氯农药和重金属含量及污染指数比较<sup>1)</sup>  
Table 2 Comparison of contents of organochlorine pesticides and heavy metals in planted soil of *Prunella vulgaris* L. and their pollution indexes<sup>1)</sup>

污染物 Pollutant	含量/mg · kg <sup>-1</sup> Content	单项污染指数 Single pollution index	综合污染指数 Comprehensive pollution index
安徽庐江 Lujiang of Anhui Province			
Pb	-	-	-
Cd	0.001	0.003	0.286
Cu	12.943	0.216	0.286
Cr	47.417	0.395	0.286
As	1.008	0.050	0.286
Hg	0.003	0.010	0.286
BHC	0.003	0.006	0.286
DDT	0.002	0.004	0.286
江苏洪泽 Hongze of Jiangsu Province			
Pb	3.443	0.069	0.399
Cd	0.002	0.007	0.399
Cu	18.655	0.311	0.399
Cr	63.385	0.528	0.399
As	3.701	0.185	0.399
Hg	0.141	0.470	0.399
BHC	0.004	0.008	0.399
DDT	-	-	-

<sup>1)</sup> -: 未检出 Undetected.

0.50 和 0.50 mg · kg<sup>-1</sup>), 安徽庐江及江苏洪泽夏枯草种植基地土壤中重金属及农药残留量均低于上述标准, 各项污染物的单项污染指数均小于 1, 且庐江和洪

泽基地土壤综合污染指数分别为0.286和0.399,均低于0.7。因而,这2个夏枯草种植基地土壤污染等级为安全级,污染水平为清洁级。

夏枯草种植地土壤重金属含量较低的原因可能是:1)这2个种植基地均为新开发的基地,土壤重金属背景值较低;2)夏枯草种植区多以农业生产为主,远离现代化工业产区,周边无明显污染源。而土壤中有机氯农药含量较低的原因可能是:1)目前现代新型生物农药已逐步取代原有的高毒高残农药,土壤中农药残留可通过自身衰减降低含量;2)夏枯草种植区多施用有机复合肥以改善土壤结构及其肥力,可以有效促进有机农药的微生物降解。

### 3.2 入药部位对夏枯草药材安全性影响

依据文献[10]的药材中重金属和有机氯农药含量最高限量(Cd、Hg、As、Pb、Cu、重金属总量、总BHC和总DDT分别小于或等于0.3、0.2、2.0、5.0、20.0、20.0、0.10和0.10 mg·kg<sup>-1</sup>),产自安徽庐江和江苏洪泽的夏枯草全草及果穗中重金属及有机氯农药残留量均低于该标准。此外,洪泽基地药材中未检出As,庐江基地药材中未检出Hg和DDT。从重金属和农药残留量来看,夏枯草果穗及全草均达到规范化生产标准,符合中药材GAP要求。

经笔者对夏枯草本草学考证获知<sup>[4]</sup>:至明代后期(约16世纪或以前),夏枯草多以带穗全草入药。夏枯草全草与果穗中重金属及农药残留量均符合国家限量标准,由此证实带穗全草入药也具安全性。因此,在夏枯草药材GAP实施过程中,应重视夏枯草带穗全草采收,以满足药材市场的大量需求。

供试的2个夏枯草种植基地土壤中重金属和有机氯农药残留量均低于国家相关限量标准,所产的夏枯草药材(包括带穗全草及果穗)中重金属和有机氯农药残留量也低于国家相关限量标准;种植基地土壤污染等级为安全级,污染水平为清洁级。前人的研究结果<sup>[15-19]</sup>已表明:中药材与土壤间重金属及有机氯农药残留量存在一定相关性。因此,从药材安全性角度考虑,应选择重金属含量低和农药残留量低的土壤实施GAP种植。

#### 参考文献:

[1] 张俊清,刘明生,符乃光,等. 中药材微量元素及重金属研究的意义与方法[J]. 中国野生植物资源, 2002, 21(3): 48-49.

- [2] 郭巧生,张君毅. 不同居群半夏药材重金属和有机氯农药残留分析[J]. 中国中药杂志, 2009, 34(9): 1161-1163.
- [3] 国家药典委员会. 中华人民共和国药典: 2010年版(一部)[M]. 北京: 中国医药科技出版社, 2010.
- [4] 陈宇航,郭巧生,王澄亚. 夏枯草本草及其入药部位变化的考证[J]. 中国中药杂志, 2010, 35(2): 242-246.
- [5] 郭巧生,陈宇航. 夏枯草基原植物及其食疗历史考证[J]. 中国中药杂志, 2011, 36(21): 3057-3062.
- [6] 陈宇航,郭巧生,王澄亚,等. 夏枯草形态学性状的遗传变异、相关及主成分分析[J]. 中国中药杂志, 2009, 34(15): 1886-1889.
- [7] 郭巧生,陈宇航,刘丽,等. 优化施肥对夏枯草果穗干物质及其产量的效应分析[J]. 中国中药杂志, 2011, 36(21): 2932-2936.
- [8] CHEN Y H, GUO Q S, LIU L. Influence of fertilization and drought stress on the growth and production of secondary metabolites in *Prunella vulgaris* L. [J]. Journal of Medicinal Plants Research, 2011, 5(9): 1749-1755.
- [9] LEIVUORI M. Heavy metal contamination in surface sediments in the gulf of Finland and comparison with the gulf of Bothnia[J]. Chemosphere, 1998, 36(1): 43-59.
- [10] 关立忠,陈建民,张宝旭,等. 药用植物及制剂外经贸绿色行业标准[S]. 北京: 中华人民共和国商务部, 2005.
- [11] 石宁宇,丁艳锋,赵秀峰,等. 某农药工业园区周边土壤重金属含量与风险评价[J]. 应用生态学报, 2010, 21(7): 1835-1843.
- [12] 王长林,郭巧生,厉彦森. 明党参种植基地土壤和药材中的有机氯农药及重金属残留分析[J]. 中国中药杂志, 2007, 32(2): 102-104.
- [13] 中国农业大学资源和环境学院. 绿色食品产地环境质量标准[S]. 北京: 中国绿色食品发展中心, 2000.
- [14] 中国环境监测总站. 土壤环境质量标准[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 1995.
- [15] 吴友根,郭巧生,郑焕强. 广藿香种植土壤和药材中有机氯农药及重金属残留分析[J]. 中国中药杂志, 2008, 33(13): 1528-1532.
- [16] 张良,王韶阳. 南京周边地区中药材及土壤有机氯杀虫剂残留分析[J]. 植物资源与环境学报, 2004, 13(4): 59-60.
- [17] 翟琨. 湖北贝母种植土壤和药材中有机农药及重金属残留分析[J]. 土壤通报, 2011, 42(4): 976-979.
- [18] 吴友根,张莲婷,黄权成,等. 短葶山麦冬种植基地和药材中有机氯农药及重金属残留分析[J]. 中国中药杂志, 2009, 34(11): 1351-1354.
- [19] 张莲婷,郭巧生,叶正良. 麦冬类药材种植土壤和药材中有机氯农药及重金属残留分析[J]. 中国中药杂志, 2010, 35(9): 1100-1103.

(责任编辑:惠红)