

# 锁阳中重金属、有害元素污染分析及健康风险评估

孙岚萍<sup>1</sup>, 马转霞<sup>1</sup>, 吕鑫<sup>1</sup>, 顾志荣<sup>2\*</sup>, 张锐<sup>1</sup>, 许爱霞<sup>2</sup>, 葛斌<sup>2\*</sup>

(1. 甘肃中医药大学药学院, 甘肃兰州 730000; 2. 甘肃省人民医院药剂科, 甘肃兰州 730000)

**摘要:** 目的 分析锁阳中重金属、有害元素污染, 并评估健康风险。方法 以  $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{O}_2$  对 65 批锁阳进行微波消解, 采用电感耦合等离子体质谱 (ICP-MS) 法测定 Cu、Pb、Cr、Cd、As、Hg 的含量, 并结合每日最大可耐受摄入量 (EDI) 与靶标危害系数法 (THQ) 对锁阳药材中重金属及有害元素健康风险等级进行评估, 推出了锁阳药材中各重金属的推荐重金属限量值 (MRLs)。结果 与国际重金属限量标准比较, 65 批样品中 4 批 Cu 超标, 4 批 Cd 超标, 7 批 Cr 超标, 1 批 Pb 超标, 不合格率为 24.62%。以锁阳原药材中重金属含量结合 EDI 与 THQ 健康风险数值为评估标准时, 65 批样品中 As、Pb、Cr、重金属总含量存在一定风险, 对人体有一定的非致癌作用。结论 该方法准确稳定, 重复性好, 可用于锁阳的质量控制。

**关键词:** 锁阳; 重金属; 有害元素; ICP-MS; 最大残留限量; 健康风险评估

**中图分类号:** R282.2      **文献标志码:** A      **文章编号:** 1001-1528(2021)06-1538-05

**doi:** 10.3969/j.issn.1001-1528.2021.06.027

## Analysis of heavy metals and harmful elements pollution in *Cynomorium songaricum* and the resultant health risks

SUN Lan-ping<sup>1</sup>, MA Zhuan-xia<sup>1</sup>, LÜ Xin<sup>1</sup>, GU Zhi-rong<sup>2\*</sup>, ZHANG Rui<sup>1</sup>, XU Ai-xia<sup>2</sup>, GE Bin<sup>2\*</sup>

(1. College of Pharmacy, Gansu University of Chinese Medicine, Lanzhou 730000, China; 2. Gansu Provincial People's Hospital, Lanzhou 730000, China)

**ABSTRACT:** AIM To analyze the pollution and health risk of heavy metals and harmful elements in *Cynomorium songaricum* Rupr. METHODS Sixty-five batches of samples treated with  $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{O}_2$  by microwave digestion were subjected to quantitative determination of copper (Cu), lead (Pb), chromium (Cr), cadmium (Cd), arsenic (As) and mercury (Hg) by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). Estimated daily intake (EDI) and target hazard quotients (THQ) were used to evaluate their health risk levels, and thus the recommended maximum residue limits (MRLs) for the aforementioned heavy metals in *C. songaricum* were proposed. RESULTS With reference to the international standard for heavy metal limit, among 65 batches of *C. songaricum*, Cu in 4 batches, Cd in 4 batches, Cr in 7 batches, and Pb in 1 batch, exceeded the limit, accounting for a disqualification rate of 24.62%. Taking EDI and THQ for the assessment of heavy metal content and the health risk value, 65 batches of *C. songaricum* with exceeding limit in As, Pb, Cr, and total amount of heavy metals brought forth certain risks and non-carcinogenic hazards to human health. CONCLUSION This accurate, stable and reproducible method can be used for the quality control of *C. songaricum*.

**KEY WORDS:** *Cynomorium songaricum* Rupr.; heavy metals; harmful elements; ICP-MS; recommended MRLs; health risk assessment

收稿日期: 2020-11-12

基金项目: 甘肃省人民医院青年项目 (20GSSY4-29); 甘肃中医药大学研究生创新基金 (CX2020-43)

作者简介: 孙岚萍 (1995—), 女, 硕士生, 从事中药制药工艺研究。Tel: 18419379106, E-mail: slfyc2014@163.com

\*通信作者: 顾志荣 (1988—), 男, 硕士, 主管中药师, 从事中药质量控制与临床中药学研究。Tel: (0931) 8281933, E-mail: guzr8817@163.com

葛斌 (1965—), 男, 主任药师, 从事中药质量控制与中药药理学研究。Tel: (0931) 8281345, E-mail: gjy0630@163.com

锁阳为锁阳科锁阳属植物锁阳 *Cynomorium songaricum* Rupr. 的干燥肉质茎<sup>[1]</sup>, 别名不老药、地毛球, 羊锁不拉等<sup>[2]</sup>, 具有补肾阳、益精血、润肠通便等功效<sup>[3]</sup>, 具有增强免疫、益智、抗衰老、抗癌等药理作用<sup>[4-6]</sup>。近年来随着种植环境的污染及不规范操作等, 中药材中的重金属及有害元素残留问题日益突出, 而重金属经人体消化系统吸收蓄积后可引起不同程度的疾病<sup>[7]</sup>, 摄入被污染的中药会对人体产生一系列的急、慢性中毒反应<sup>[8]</sup>。本研究采用 ICP-MS 法分析锁阳中重金属含量, 通过对比每日暂定可耐受摄入量 PTDI(provisional tolerable daily intake) 与 EDI(exposure daily intakes) 评估锁阳健康风险水平, 结合 THQ(target hazard quotients) 评估锁阳在推荐服用剂量下, 单一重金属含量及总量对成人和儿童的非致癌健康风险, 以期为其他药食两用中药的安全性评估提供参考。

## 1 材料

1.1 仪器 ICP-MS 仪(美国 Thermo Fisher 公司); ETHOS 900 微波消解系统(意大利 Milestone

公司); Milli-Q 超纯水装置(法国 Millipore 公司, 电阻率 $\geqslant 18.2\text{ M}\Omega/\text{cm}$ ); Sartorius BT 125D 电子天平(万分之一, 德国 Sartorius 公司)。所用玻璃仪器均以浓硫酸浸泡过夜, 再以去离子水彻底冲洗。1.2 试剂与药物 Cu、Pb、Cr、Cd、As、Hg 标准溶液质量浓度均为 1 000  $\mu\text{g}/\text{mL}$ , 购自国家有色金属及电子材料分析测试中心; 钋(Bi)、铟(In)、锗(Ge) 单元素内标液(10  $\mu\text{g}/\text{mL}$ , 美国 SPEX Certiprep 公司); 柑橘叶标准物质(批号 GSB-11), 购自中国地球物理化学勘察研究所。HNO<sub>3</sub> 和 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>(均为优级纯); 水为去离子水。

65 批锁阳采集于甘肃、内蒙古、新疆、青海、宁夏等 5 个省(区), 包括武威、酒泉、敦煌、张掖等 12 个市(区/州/旗), 均经甘肃中医药大学中药鉴定教研室李硕副教授鉴定为锁阳 *Cynomorium songaricum* Rupr. 的干燥肉质茎。将样品自然阴干、粉碎后过 80 目筛, 冷藏备用, 具体信息见表 1。

表 1 样品信息  
Tab. 1 Information of samples

编号	批次 /批	来源	海拔/m	气候类型	年平均无	年降雨量/ mm	全年日照 时数/h	年平均 气温/°C
					霜期/d			
DH(1~5)	5	甘肃省酒泉市敦煌市	958~1 815	暖温带干旱性气候	142~190	39.9	3 246.7~3 300	9.3~9.9
JT(6~12)	7	甘肃省酒泉市金塔县	1 233~1 421	温带大陆性荒漠气候	133~186	47~160	3 193.2	8~10
GZ(13~19)	7	甘肃省酒泉市瓜州县	1 063~1 590	温带大陆性气候	145~247	45.7~75.3	3 230~3 360	8~9.7
MQ(20~26)	7	甘肃省武威市民勤县	1 293~1 545	温带大陆性干旱气候	163~190	156	2 400~3 073.5	9~9.5
SN(27~32)	6	甘肃省张掖市肃南县	1 475~3 154	温带大陆性气候	80~96	87~300	2 683~3 085	2~3.6
ZQ(33~37)	5	内蒙古阿拉善盟阿拉善左旗苏红图	789~1 541	中温带大陆性气候	150	90	3 100	7.2
YQ(38~41)	4	内蒙古阿拉善右旗阿拉腾	1 299~1 503	温带大陆性气候	150	75	2 880	8.4
PL(42~45)	4	宁夏省石嘴山市平罗县	1 103~1 247	温带大陆性气候	159	173.2	3 008.6	8.8
HT(46~49)	4	新疆和田地区和田县	2 875~3 436	温带极端干旱荒漠气候	220	50	2 735	8
KS(50~53)	4	新疆喀什地区喀什市疏附县	1 229~1 312	暖温带大陆性干旱气候	212	72.2	2 923.7	12
ALT(54~57)	4	新疆阿勒泰地区阿勒泰市	813~1 003	温带大陆性气候	151	199	2 881	4.5
TD(58~61)	4	青海省海南藏族自治州同德县	2 926~3 266	高原大陆性气候	无绝对无霜期	440	2 655	0.5
GBT(62~65)	4	青海省海西蒙古族藏族自治州格尔木戈壁滩	2 815~2 833	荒漠、半荒漠大陆性气候	无绝对无霜期	41.5	3 358	4

## 2 方法与结果

2.1 ICP-MS 条件 等离子体射频功率 1 300 W; 雾化气(氩气)体积流量 1.1 L/min; 辅助气体流量 1.0 L/min; 等离子流 15 L/min; 采样深度 7.0 mm; 脉冲电压 1 050 V; 蠕动泵转数 40 r/min; 灶管为石英一体化, 2.5 mm 中心通道; 电压 3 V, 驻留时间 0.03 s, 采集时间 40 s, 重复 3 次, 取平均值。内标元素为<sup>72</sup>Ge、<sup>115</sup>In、<sup>209</sup>Bi, 以校正基体效应所引入的干扰, 从而保证测量结果准确性。

2.2 标准溶液制备 精密量取各单元素标准溶液, 2% HNO<sub>3</sub> 稀释, 其中 Cu、Pb 为 0.1、0.2、0.4、

1.0、2.0、5.0、10.0、20.0、50.0  $\mu\text{g}/\text{L}$ , As、Cr、Cd、Hg 为 0.05、0.1、0.2、0.5、1.0、2.0、5.0、10.0、20.0  $\mu\text{g}/\text{L}$ 。另制备<sup>72</sup>Ge、<sup>115</sup>In、<sup>209</sup>Bi 质量浓度为 1  $\mu\text{g}/\text{mL}$  的混合内标液。

2.3 样品溶液制备 取本品粉末约 0.5 g, 精密称定, 置于聚四氟乙烯消解罐中, 加入 8 mL HNO<sub>3</sub>、2 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, 浸泡过夜, 于微波消解仪中程序消解<sup>[9]</sup>, 冷却, 转移至 50 mL 量瓶中, 去离子水稀释至刻度即得。同法制备空白溶液与标准参照物溶液。

### 2.4 方法学考察

2.4.1 线性关系考察 取“2.2”项下溶液, 在

“2.1”项条件下进样，结果见表2，表明各元素在各自范围内线性关系良好。

#### 2.4.2 检出限 取空白溶液，在“2.1”项条件下

连续测定11次，以各元素信号响应值标准偏差( $\delta$ )的3倍所对应的质量浓度作为检测限(LOD)<sup>[10]</sup>，结果见表2。

表2 各元素线性关系

Tab. 2 Linear relationships of various elements

元素	回归方程	r	线性范围/( $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ )	检测限/( $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ )
Cu	$Y=9.976\times10^3X+1.107\times10^3$	0.999 9	0.1~50.0	0.048
Pb	$Y=1.021\times10^5X+5.895\times10^3$	0.999 6	0.1~50.0	0.006
Cd	$Y=5.411\times10^3X+9.053\times10^0$	0.999 7	0.05~20.0	0.027
Cr	$Y=7.804\times10^3X+5.793\times10^2$	0.999 5	0.05~20.0	0.079
As	$Y=1.021\times10^3X+1.420\times10^1$	0.999 9	0.05~20.0	0.026
Hg	$Y=8.314\times10^3X+3.896\times10^1$	0.999 8	0.05~20.0	0.006

2.4.3 精密度试验 取“2.2”项下溶液，在“2.1”项条件下进样6次，测得各元素RSD 1.67%~3.47%，表明仪器精密度良好。

2.4.4 重复性试验 取样品DH1(甘肃省酒泉市敦煌市1)约0.5 g，精密称定，按“2.3”项下方法制备供试品溶液，在“2.1”项条件下测定，测得各元素重复性RSD 1.68%~3.26%，表明该方法重复性良好。

2.4.5 稳定性试验 取样品DH1约0.5 g，精密

称定，按“2.3”项下方法制备供试品溶液，在“2.1”项条件下于0、1、2、4、6、8、10、12 h进样，测得各元素RSD 0.77%~2.39%，表明供试品溶液在12 h内稳定性良好。

2.4.6 加样回收率试验 取样品DH1约0.25 g，精密称定，精密加入8 mL HNO<sub>3</sub>、2 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>，加入Pb、Cu、Cr、Cd、As、Hg各单元素标准溶液适量，按“2.3”项下方法制备供试品、空白溶液，在“2.1”项条件下测定，计算回收率，结果见表3。

表3 各元素加样回收率试验结果(n=6)

Tab. 3 Results of recovery tests for various elements (n=6)

元素	取样量/ $\mu\text{g}$	原有量/ $\mu\text{g}$	加入量/ $\mu\text{g}$	测得量/ $\mu\text{g}$	平均回收率/%	RSD/%
Cu	0.25	1.814	1.800	3.607	95.76	1.81
Pb	0.25	0.533	0.560	1.095	101.64	1.34
Cr	0.25	0.253	0.250	0.498	96.66	3.03
Cd	0.25	0.071	0.070	0.143	98.69	4.72
As	0.25	0.145	0.150	0.298	104.71	3.46
Hg	0.25	0.0014	0.0015	0.0026	103.74	5.16

2.5 样品含量测定 按“2.3”项下方法制备供试品溶液，在“2.1”项条件下测定供试品溶液中6种元素含量，结果见表4。

#### 2.6 重金属健康风险评估

2.6.1 EDI计算 本研究中将EDI与PTDI对比，得出锁阳风险水平类型，其中Cu、Pb、Cd、As、Hg、Cr的PTDI分别为0.5、0.00357、0.00083、0.00214、0.000573、0.00214 mg/(kg·d)<sup>[11]</sup>。当EDI<PTDI时，认为人体负荷重金属的量没有明显健康影响。见式1。

$$\text{EDI} = \frac{(\text{C} \times \text{IRD})}{\text{BW}} \quad (1)$$

其中，BW为人体平均体质量(成人55.9 kg，儿童32.7 kg)；IRD是每日摄入药材量，此处根据2020年版《中国药典》规定，为5~10 g<sup>[1]</sup>。

2.6.2 THQ计算 本研究通过USEPA的指导结

合实验数据，计算锁阳中重金属的THQ，由于需考虑药物所占食物(成人1500 g，儿童800 g)的比例<sup>[12]</sup>，因此当THQ<0.00667时，可认为重金属量对成人健康无明显危害；若THQ<0.00625时，可认为它对儿童健康无明显影响。见式2。

$$\text{THQ} = \frac{\text{C} \times \text{EF} \times \text{ED} \times \text{IRD}}{\text{BW} \times \text{AT} \times \text{RFD}} \quad (2)$$

其中，EF为每年暴露于毒物的天数(30 d)，ED为暴露于毒物的年数(30年)，AT为平均接触非致癌毒物的时间，平均人寿命=70岁×365 d，RFD为参考剂量，USEPA提供的数值<sup>[13]</sup>为Cu 0.04、Pb 0.0015、As 0.0003、Cd 0.001、Hg 0.0003、Cr 0.0003  $\mu\text{g}/\text{g}$ 。

2.6.3 MRL计算 在安全THQ取值情况下(THQ=1)，计算锁阳中重金属的安全限量值。见式3。

$$\text{MRL} = \text{THQ} \times \frac{\text{FIR} \times \text{WAB} \times \text{AT} \times \text{RFD} \times 1000}{\text{WF} \times \text{EF} \times \text{ED} \times \text{FIR}} \quad (3)$$

表4 各元素含量测定结果 ( $\bar{x} \pm s$ , n=3)Tab. 4 Results of content determination for various elements ( $\bar{x} \pm s$ , n=3)

编号	Cu	Pb	Cr	Cd	As	Hg	编号	Cu	Pb	Cr	Cd	As	Hg
1	7.256±0.115	2.133±0.092	1.013±0.014	0.285±0.013	0.582±0.116	0.006±0.001	34	10.756±0.093	1.109±0.009	0.436±0.040	0.125±0.046	0.467±0.120	0.006±0
2	5.256±0.239	3.255±0.074	1.116±0.122	0.103±0.005	0.711±0.164	0.006±0	35	2.963±0.102	3.761±0.033	0.437±0.029	0.096±0.036	0.527±0.094	0.002±0
3	10.027±0.093	4.412±0.045	0.549±0.121	0.026±0.009	1.141±0.116	0.008±0.001	36	0.922±0.099	2.489±0.014	0.398±0.009	0.107±0.007	0.326±0.063	0.001±0
4	5.485±0.286	1.521±0.023	0.688±0.085	0.359±0.050	0.842±0.137	0.022±0.004	37	1.585±0.163	2.527±0.068	0.426±0.018	0.274±0.047	0.433±0.060	0.002±0
5	4.435±0.133	1.029±0.093	1.215±0.085	—	0.942±0.049	—	38	0.556±0.090	1.661±0.088	0.514±0.026	0.045±0.005	0.622±0.057	0.001±0
6	5.526±0.045	0.948±0.037	1.036±0.087	0.326±0.019	1.002±0.006	0.006±0	39	21.566±0.082	2.600±0.069	0.016±0.008	0.108±0.075	0.785±0.125	—
7	13.259±0.309	0.811±0.106	0.169±0.094	0.002±0.001	0.560±0.097	0.010±0.005	40	7.237±0.143	2.335±0.055	0.999±0.102	0.411±0.068	0.649±0.071	—
8	0.841±0.085	1.298±0.069	0.585±0.065	0.388±0.059	0.408±0.076	0.007±0	41	5.336±0.111	1.979±0.012	0.796±0.081	0.102±0.040	0.712±0.085	0.003±0.001
9	2.385±0.180	1.352±0.049	3.115±0.079	1.055±0.079	0.395±0.073	0.014±0.002	42	1.026±0.102	1.206±0	0.552±0.042	0.011±0.007	0.545±0.063	0.014±0.001
10	3.699±0.078	3.249±0.043	1.026±0.120	0.049±0.008	1.002±0.006	0.008±0	43	0.289±0.008	1.229±0.014	1.339±0.115	0.127±0.054	0.414±0.071	0.001±0
11	5.984±0.066	3.223±0.143	0.326±0.066	0.210±0.014	0.421±0.065	0.009±0.001	44	7.560±0.096	0.979±0.017	0.411±0.036	0.104±0.016	0.386±0.056	—
12	3.588±0.070	4.026±0.074	0.259±0.006	0.184±0.009	0.411±0.064	0.006±0	45	2.369±0.077	1.954±0.009	0.026±0.075	0.094±0.007	0.344±0.041	0.002±0
13	6.550±0.112	2.549±0.042	0.349±0.007	1.255±0.068	1.021±0.142	0.013±0.004	46	0.225±0.024	1.465±0.033	2.125±0.085	0.285±0.065	0.559±0.117	—
14	1.289±0.057	1.592±0.011	0.422±0.023	0.330±0.070	0.480±0.061	0.009±0	47	10.355±0.095	0.910±0.058	1.322±0.075	0.036±0.011	0.392±0.055	0.002±0.021
15	12.339±0.490	2.634±0.088	0.226±0.011	0.188±0.058	0.918±0.057	0.012±0.001	48	1.267±0.066	1.317±0.077	1.452±0.040	0.066±0.009	—	0.001±0
16	7.229±0.053	1.677±0.025	1.006±0.009	—	0.851±0.058	0.006±0	49	2.185±0.064	3.391±0.033	2.153±0.082	0.218±0.068	0.311±0.070	0.005±0
17	8.366±0.087	2.100±0.135	2.119±0.015	0.034±0.006	0.741±0.149	0.003±0	50	4.260±0.052	2.170±0.046	1.334±0.077	0.159±0.042	0.305±0.011	0.004±0
18	12.658±0.093	2.156±0.219	0.369±0.269	0.045±0.006	0.254±0.053	0.008±0	51	5.625±0.124	0.097±0.006	2.302±0.067	0.377±0.054	0.311±0.052	—
19	3.289±0.249	0.538±0.022	1.012±0.076	0.552±0.044	0.454±0.045	0.008±0.001	52	3.864±0.057	1.902±0.104	0.755±0.077	0.824±0.055	0.372±0.045	0.005±0
20	2.248±0.227	2.868±0.070	0.818±0.024	1.003±0.009	0.155±0.040	0.002±0	53	6.116±0.099	1.498±0.134	2.206±0.212	0.188±0.063	0.523±0.057	0.004±0
21	4.437±0.094	2.082±0.057	1.115±0.064	0.255±0.043	0.272±0.051	0.005±0	54	0.710±0.102	1.622±0.006	1.126±0.074	0.032±0.006	0.329±0.058	0.005±0
22	10.652±0.251	2.354±0.047	0.422±0.065	0.001±0	0.660±0.089	0.002±0	55	2.452±0.069	2.803±0.012	1.357±0.086	0.008±0.001	0.466±0.048	0.012±0.004
23	8.249±0.154	2.176±0.029	0.729±0.032	0.116±0.026	0.972±0.151	0.006±0	56	4.650±0.172	1.967±0.011	0.711±0.011	—	0.405±0.031	0.006±0
24	2.725±0.103	2.019±0.033	0.336±0.044	0.001±0	0.517±0.064	0.008±0	57	7.215±0.120	2.008±0.206	0.822±0.020	—	0.640±0.056	—
25	4.731±0.116	2.261±0.084	0.943±0.023	0.063±0.006	0.684±0.120	0.011±0.002	58	9.139±0.109	2.973±0.610	1.141±0.059	0.215±0.064	0.215±0.069	0.005±0
26	15.737±0.142	1.141±0.089	2.010±0.078	0.029±0.008	0.524±0.114	—	59	9.949±0.041	2.091±0.117	0.060±0.014	0.143±0.038	0.759±0.047	0.008±0
27	28.742±0.144	2.361±0.070	1.104±0.071	—	0.233±0.063	—	60	25.270±0.207	1.133±0.112	0.784±0.077	0.172±0.048	0.499±0.102	0.009±0
28	9.748±0.142	2.230±0.050	1.018±0.059	0.211±0.073	0.213±0.079	0.011±0.002	61	9.549±0.079	2.174±0.173	0.257±0.017	1.066±0.049	1.016±0.086	—
29	8.952±0.052	1.124±0.125	0.952±0.003	0.276±0.068	—	—	62	1.890±0.014	5.216±0.032	0.605±0.031	0.003±0	0.216±0.058	0.004±0
30	12.256±0.098	2.780±0.062	0.116±0.075	—	0.355±0.055	—	63	2.687±0.096	4.257±0.096	0.475±0.033	0.323±0.053	0.289±0.014	0.015±0.002
31	13.158±0.209	3.112±0.067	0.225±0.031	0.004±0.001	0.485±0.098	0.002±0	64	—	2.987±0.106	0.370±0.023	0.021±0.007	0.262±0.047	0.013±0.002
32	24.333±0.096	2.106±0.010	0.444±0.043	—	0.552±0.044	0.001±0	65	3.489±0.068	2.340±0.078	1.077±0.062	0.216±0.070	0.464±0.048	0.003±0
33	3.260±0.078	2.253±0.091	0.608±0.067	0.088±0.006	0.421±0.064	—							

注:—表示含量低于检出限,计算时以0计。

其中, WF 为每日摄入食物总量(成人 1 500 g, 儿童 800 g), FIR/WF 表示服用药材占摄入食物总量的比例。

## 2.7 结果分析

**2.7.1 重金属超标率** 表 4 显示, 锁阳中重金属含量依次为 Cu>Pb>Cr>As>Cd>Hg, 以 ISO 及药典所规定的 MRL 最大限量值<sup>[14]</sup>为标准, 可得出锁阳中有 4 批 Cu 超标、4 批 Cd 超标、7 批 Cr 超标、1 批 Pb 超标, 不合格率为 24.62%。

**2.7.2 重金属风险评估及推荐限量值** 表 5 表明, 成人及儿童服用锁阳中重金属元素的 EDI 依次为 Cu>Pb>Cr>As>Cd>Hg, 由于各重金属的 EDI 值均小于 PTDI 值, 因此以其为评估指标, 认为人体服用锁阳后负荷重金属量无明显的健康危害; 以 THQ 为风险评估指标时, 依次为 Cr>As>Pb>Cd>Cu>Hg, 与标准的 THQ 相比发现, Cr、As、Pb 的 THQ 及总 THQ 均大于锁阳。因此, 锁阳若以原粉入药, 则药材中残留的 Pb、As、Cr 及总金属量会

对暴露人群造成明显的健康影响。

虽然锁阳中各单一重金属的不合格率低, 但累积总 THQ 显示它们仍对人体健康有明显的危害。通过式 (3) 计算锁阳中重金属的最大限量值, 结果见表 6。

## 3 讨论

2020 年版《中国药典》对中药材中有害重金属元素的限度  $\mu\text{g/g}$  规定为 Pb≤5.0、Cd≤1.0、As≤2.0、Hg≤0.2、Cu≤20.0、重金属总量≤20.0; ISO 国际标准  $\mu\text{g/g}$  规定为 Pb≤10、As≤4、Cd≤2、Hg≤3。但未对 Cr 作出规定, 参考 GB 2762—2012 食品标准中水产动物及乳制品 Cr 含量最高为 2  $\mu\text{g/g}$ , 赵霞等<sup>[15]</sup>提出冰黄肤乐软膏限量标准为 Cr≤2  $\mu\text{g/g}$ 。Cr 是人体必需的微量元素, 但过量摄入则会危害人体健康, 根据孔丹丹等<sup>[16]</sup>提供的该元素 RFD (1.50  $\mu\text{g/g}$ ), 得出锁阳中其推荐限量值为 1 586.9, 不符合实际情况。目前, 暂无 Cr 元素的 PTDI 参数, 因此本研究依据

表5 样品中重金属 EDI、THQ

Tab. 5 EDIs and THQs of heavy metals in samples

元素	PTDI/ (mg·kg <sup>-1</sup> ·d <sup>-1</sup> )	参考剂量/ (mg·kg <sup>-1</sup> ·d <sup>-1</sup> )	EDI/(mg·kg <sup>-1</sup> ·d <sup>-1</sup> )		THQ	
			成人	儿童	成人	儿童
Cu	0.500 00	0.040 0	0.005 141 7	0.001 054 9	0.001 086 9	0.000 928 9
Pb	0.003 57	0.001 5	0.000 384 0	0.000 328 2	0.009 017 2	0.007 707 4
Cd	0.000 83	0.001 0	0.000 041 3	0.000 035 3	0.001 455 2	0.001 243 8
As	0.002 14	0.000 3	0.000 095 8	0.000 081 8	0.011 243 2	0.009 610 0
Hg	0.000 57	0.000 3	0.000 001 1	0.000 000 1	0.000 138 1	0.000 118 0
Cr	0.002 14	0.000 3	0.000 157 5	0.000 134 6	0.018 491 2	0.015 805 8
总 THQ	—	0.041 431 8	0.035 413 9	—	—	—

表6 样品中重金属的推荐限量值 (mg/kg)

Tab. 6 Recommended limits of heavy metals in samples  
(mg/kg)

元素	成人	儿童
Cu	42.318 4	46.415 8
Pb	1.586 9	1.740 6
Cd	1.058 0	1.160 4
As	0.317 4	0.348 1
Hg	0.317 4	0.348 1
Cr	0.317 4	0.348 1

2020年版《中国药典》中Cr与As的限量要求相同，将其PTDI、RFD参数设为与As相同。

本实验结果表明，所得锁阳中Cu、Cd、Hg限量值均大于ISO及《中国药典》中规范的MRL值，但对比PTDI与THQ 2种风险评估模型发现，65批样品中Pb、As、Cr残留量会对人体健康造成影响，因此应从中药材种植及加工源头等方面着手，从而保障中药材用药安全<sup>[17]</sup>。目前，若单一以最大残留限量值判断所有中药材污染水平，则缺乏不同类型药材、药材实际服用剂量等考察，导致重金属污染水平的误判。因此，考虑成人与儿童使用锁阳药材剂量的差异性，最后确定锁阳成人Cu、Pb、Cd、As、Hg、Cr的最大残留限量值分别为42.318 4、1.586 9、1.058 0、0.317 4、0.317 4 mg/kg，儿童分别为46.415 8、1.740 6、1.160 4、0.348 1、0.348 1 mg/kg。

综上所述，本研究对锁阳的安全性评价及特定人群的安全用药提出了新的研究思路和数据参考，以期避免部分元素指纹图谱及相对含量差异较大的样品不被重视，造成其特征性难以显现，同时阻止有害金属元素的危害。

#### 参考文献：

- [1] 国家药典委员会. 中华人民共和国药典：2020年版一部 [S]. 北京：中国医药科技出版社，2020.
- [2] 中国科学院植物研究所. 中国高等植物图鉴（第2册）[M]. 北京：科学出版社，1972.
- [3] 任梦云，杨光，杜乐山，等. 药用植物锁阳的研究进展 [J]. 生物学杂志，2018，35(5)：95-98.

- [4] Tao R, Miao L, Yu X, et al. *Cynomorium songaricum* Rupr demonstrates phytoestrogenic or phytoandrogenic like activities that attenuates benign prostatic hyperplasia via regulating steroid 5- $\alpha$ -reductase [J]. *J Ethnopharmacol*, 2019, 235: 65-74.
- [5] Wang F, Zhang J, Liu Q, et al. A polysaccharide isolated from *Cynomorium songaricum* Rupr. protects PC12 cells against H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>-induced injury [J]. *Int J Biol Macromol*, 2016, 87: 222-228.
- [6] 尚林，李建菊，尚军. 锁阳多糖的抗衰老作用[J]. 中国老年学杂志，2018，38(6)：1458-1460.
- [7] Wang Q Y, Liu J S, Cheng S. Heavy metals in apple orchard soils and fruits and their health risks in Liaodong Peninsula, northeast China [J]. *Environ Monit Assess*, 2015, 187(1): 4178-4180.
- [8] 林龙勇，于冰冰，廖晓勇，等. 三七及其中药制剂中砷和重金属含量及健康风险评估[J]. 生态毒理学报，2013，8(2)：244-249.
- [9] Wang R, Kong D D, Yao J J, et al. A BiFEs-based SWASV method for fast screening of multi-heavy metals in Xiaochaihu Tang [J]. *Microchemical J*, 2018, 143: 319-325.
- [10] 周亚菊，蔡荣，张芳芳. 注射用重组人生长激素中卤化丁基胶塞镁、钛元素的迁移研究[J]. 药物分析杂志，2016，36(5)：929-932.
- [11] 姚姣姣，孔丹丹，骆骄阳，等. 膜荚黄芪中重金属污染分析及其健康风险评估[J]. 中国中药杂志，2019，44(14)：3094-3099.
- [12] 周利，杨健，詹志来，等. 不同产地黄连中重金属的含量测定及不同用药方式下黄连重金属的风险评估[J]. 药学学报，2018，53(3)：432-438.
- [13] 闫卉欣，孔丹丹，李歆悦，等. 动物药僵蚕中重金属及有害元素的污染水平及其健康风险评估[J]. 中国中药杂志，2019，44(23)：5051-5057.
- [14] ISO/IEC. Traditional Chinese medicine—Determination of heavy metals in herbal medicines used in traditional Chinese medicine[S]. 2015.
- [15] 赵霞，李芝奇，徐玥，等. 冰黄肤乐软膏中24种机元素含量测定及重金属限量标准的建立[J]. 世界中医药，2020，15(13)：1857-1864.
- [16] 孔丹丹，闫卉欣，李歆悦，等. 苦参及其提取液中的重金属污染分析及其初步风险评估[J]. 世界科学技术（中医药现代化），2020，22(2)：377-384.
- [17] 秦双双，黄静雯，袁媛，等. 中药材重金属元素及其与指标性成分相关性分析[J]. 中国实验方剂学杂志，2018，24(6)：66-70.