

安全监测

ICP-MS 法测定 18 种动物药中重金属及有害元素的
残留量及初步风险分析*

左甜甜, 李耀磊, 金红宇**, 马双成**

(中国食品药品检定研究院, 北京 100050)

摘要 目的: 建立动物药中重金属及有害元素残留量的测定方法, 为相关品种重金属及有害元素的风险评估、标准完善和质量监督提供依据。**方法:** 采用电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)法测定动物药中铅、镉、砷、汞的含量。等离子气流量: $15.0 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$; 蠕动泵 $0.20 \text{ r} \cdot \text{s}^{-1}$; 雾化室温度: $2 \text{ }^\circ\text{C}$; 辅助气流量: $0.8 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$; He 气流量: $5 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$; 载气流量: $0.8 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$; 射频功率: $1\ 550 \text{ W}$; 数据采集模式: 跳峰采集模式; 采样深度: 10 mm ; 重复次数: 3 次; 扫描次数: 100 次。**结果:** 4 种重金属及有害元素的线性关系良好 ($r > 0.990$), 回收率为 $80\% \sim 120\%$, 重复性良好。按照现行 2015 年版中国药典水蛭等动物药重金属及有害元素限量标准, 18 种 58 批动物药的总体合格率为 74.1% , 其中铅、镉、砷、汞元素均存在超标的情况, 其中合格率分别为 91.4% 、 89.7% 、 86.2% 和 96.6% 。**结论:** 本文所建立的 ICP-MS 法适用于动物药中重金属及有害元素残留量的分析和评定。个别动物药品种重金属及有害元素污染情况较为严重。建议重视动物药的质量, 从风险评估的角度, 完善动物药重金属及有害元素的限量标准。

关键词: 电感耦合等离子体质谱(ICP-MS); 动物药; 重金属; 有害元素; 铅; 镉; 砷; 汞; 风险评估

中图分类号: R 917 文献标识码: A 文章编号: 0254-1793(2017)02-0237-06

doi: 10.16155/j.0254-1793.2017.02.08

Determination of residues of heavy metals and harmful elements in 18
types of animal medicines by ICP-MS and preliminary risk analysis*

ZUO Tian-tian, LI Yao-lei, JIN Hong-yu**, MA Shuang-cheng**,

(National Institutes for Food and Drug Control, Beijing 100050, China)

Abstract Objective: To establish a method for the determination of heavy metals and harmful elements in animal medicines, so as to provide a reference for risk evaluation, standard improvement and quality supervision for the related medicines. **Methods:** The contents of lead, cadmium, arsenic and mercury in animal drugs were

* 国家十二五“重大新药创制”课题“中药质量安全检测和风险控制技术平台”(2014ZX09304307-002)

** 通信作者 金红宇 Tel: (010) 67095994; E-mail: jhyu@nifdc.org.cn

马双成 Tel: (010) 67095272; E-mail: masc@nifdc.org.cn

第一作者 Tel: (010) 67095994; E-mail: zuotiantian2011@163.com

determined by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). The determination conditions were as follows: plasma gas flow: $15.0 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$; peristaltic pump: $0.20 \text{ r} \cdot \text{s}^{-1}$; spray chamber temperature: $2 \text{ }^{\circ}\text{C}$; auxiliary gas flow rate: $0.8 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$; He gas flow rate: $5 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$; sample carrier gas flow rate: $0.8 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$; radio frequency power: $1\ 550 \text{ W}$; data sampling mode: peak-jump acquisition mode; sampling depth: 10 mm ; repeat times: 3 times; and scanning times: 100 times. **Results:** The linear relationship of the four heavy metal elements was good ($r > 0.990$), the recovery rate ranged from 80% to 120%, and the repeatability was also good. The established method was applicable for determining the amount of heavy metals and harmful elements of animal medicines. According to limits of heavy metals and harmful elements for animal medicines such as leech in Chinese Pharmacopoeia of 2015 edition, the qualified rate of heavy metals and harmful elements of these animal medicines was 74.1%. The qualified rates of Pb, Cd, As and Hg were 91.4%, 89.7%, 86.2% and 96.6%, respectively. **Conclusion:** The ICP-MS method established in this paper is suitable for the analysis and evaluation of heavy metals and harmful elements in animal drugs. The problem of heavy metals and harmful elements in animal medicines cannot be ignored. It is suggested to pay more attention to the quality of animal medicines and improve the standards of heavy metals and harmful elements of animal medicines from the view of risk assessment. **Keywords:** inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS); animal medicines; heavy metals; harmful elements; lead; cadmium; arsenic; mercury; risk assessment

近年,随着环境污染日益严重,未经处理的工业“三废”的排放,农药、化肥等的不规范使用,成方制剂生产加工及贮藏运输过程中产生的污染,均造成中药重金属污染急剧加重。研究表明,重金属对人体的代谢和正常的生理作用造成明显的损害,当体内重金属过量时会严重危害人体健康。例如汞中毒严重影响人体的中枢神经系统,使四肢麻痹;砷过量影响细胞正常代谢;铅中毒可损伤生殖细胞,镉中毒会导致肾功能损伤等^[1]。同时,重金属超标问题已成为影响中药出口和阻碍我国中药走向国际化的主要问题。因此,重金属及有害元素污染作为为焦点问题之一,已经引起了越来越多的学者的关注^[2]。

动物药是指动物的整体或某一部分、动物体的生理或病产物、动物体的加工品等供药用的一类中药,具有十分悠久的药用历史。历代本草对于动物药都有详细的记载和描述。东汉的《神农本草经》记载药物 365 种,其中动物药有 67 种,明朝《本草纲目》中动物药增至 461 种^[3]。动物药具有来源广,活性强,疗效高等特点,具有很大的药用价值,具有不可替代性。

对动物药中重金属残留等安全问题的研究报道目前尚较为少见。重金属及有害元素的测定方法主

要包括原子吸收光谱法、原子荧光光度法和原子发射光谱法等,大多只能用于单个元素的测定。而 ICP-MS 法,可以同时多元素进行分析测定,并且具有灵敏度高、检出限低、线性范围宽等优点,备受分析工作者的关注^[4]。本研究收集 18 种 58 批次常见动物药材,采用 ICP-MS 法,测定了铅、镉、砷、汞等重金属及有害元素的残留量,为进一步提高动物药的质量,保证其用药安全提供了依据。

1 仪器与材料

Agilent 7700X ICP-MS (Agilent 公司); Millipore Mill-Q 超纯水机 (Millipore 公司); Mars5 微波消解仪 (CEM 公司)。

Pb、Cd、As、Hg 单元素标准溶液购于国家标准物质研究中心,其质量浓度均为 $100 \mu\text{g} \cdot \text{mL}^{-1}$; 调谐溶液为 Li、Mg、Y、Ce、Tl、Co 的混合标准溶液 (Agilent 公司,质量浓度为 $1 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,批号 5185-5959); 内标溶液为 $100 \mu\text{g} \cdot \text{mL}^{-1}$ 的 Li、Sc、Ge、Rh、In、Tb、Lu、Bi 的混合内标溶液稀释 100 倍使用 (Agilent 公司,批号 5188-6525); 硝酸为微电子级 (Sigma-Aldrich 公司,批号 SZBD1060V),水为经 Millipore Milli-Q 水处理系处理后的去离子水。样品分别来源于北京同仁堂中药饮片厂、北京卫仁中药饮片厂、北京德威治药房和北京时代千方大药房等,由中国食品药品检定研

究院康帅助理研究员鉴定。

2 仪器工作条件

等离子气流量: 15.0 L·min⁻¹; 蠕动泵 0.20 r·s⁻¹; 雾化室温度: 2 ℃; 辅助气流量: 0.8 L·min⁻¹; He 气流量: 5 mL·min⁻¹; 载气流量: 0.8 L·min⁻¹; 射频功率: 1 550 W; 数据采集模式: 跳峰采集模式; 采样深度: 10 mm; 重复次数: 3 次; 扫描次数: 100 次。

3 标准溶液

3.1 混合标准储备液的配制 量取 Pb、Cd、As、Hg 单元素标准溶液, 用 5% 硝酸溶液稀释, 分别配制成每 1 mL 含 Pb 5 μg, Cd 1 μg, As 5 μg, Hg 1 μg 的标准储备液。

分别精密量取 Pb、Cd、As、Hg 的标准储备液适量, 置 50 mL 量瓶中, 用 5% 硝酸溶液定容至刻度, 摇匀, 制成每 1 mL 含 Pb 0.5 μg, Cd 0.1 μg, As 0.5 μg, Hg 0.2 μg 的混合标准储备液。

3.2 标准曲线的制备 分别精密量取混合标准储备液适量, 加 5% 硝酸溶液稀释, 分别配成含 Pb 1、2.5、10、20、50 μg·mL⁻¹, Cd 0.2、0.5、2、4、10 μg·mL⁻¹, 含 As 5、12.5、50、100、250 μg·mL⁻¹, 含 Hg 0.4、1、4、8、20 μg·mL⁻¹ 的系列混合标准溶液。以计数比率为纵坐标, 质量浓度为横坐标, 绘制标准曲线。

4 种元素的标准曲线线性关系良好, 相关系数均在 0.990 以上(见表 1)。

表 1 标准曲线及线性范围

Tab. 1 Standard curves and linear ranges

元素 (element)	回归方程 (regression equation)	r	线性范围 (linear range) / (ng·g ⁻¹)
Pb	Y=0.008 1X+0.00	0.999 8	1~50
Cd	Y=0.003 4X+3.33	0.999 8	0.2~10
As	Y=0.005 7X+1.18	1.000 0	5~250
Hg	Y=0.002 9X+1.61	0.992 0	0.4~20

4 供试品溶液、空白对照溶液的制备

将样品粉碎, 精密称取待测样品 0.5 g, 分别置微波消解罐中, 加硝酸 8.0 mL, 按操作规程安装好装置, 消解(3 min 升温至 120 ℃保持 3 min, 2 min 升温至 150 ℃保持 3 min, 2 min 升温至 200 ℃保

持 12 min), 消解结束后, 冷却至 60 ℃以下, 取出消解罐, 放冷, 将消解液转入至 50 mL 量瓶中, 用少量水洗涤消解罐 3 次, 洗液合并量瓶中, 用水定容至刻度, 摇匀, 即得供试品溶液。同法同时制备试剂空白溶液。

5 进样精密度

取标准曲线第 4 点溶液, 连续进样 5 次, 分别以各元素峰面积值计算 RSD。各元素的 RSD 均小于 3%, 表明仪器精密度良好。

6 重复性试验

取冬虫夏草样品粉末约 0.5 g, 平行操作 5 份, 分别按供试品溶液的制备方法操作, 按“2”项下条件进行测定, 计算各元素含量。Pb、Cd、As、Hg 的含量均值分别为 1.728、0.088、11.198、1.108 mg·kg⁻¹, RSD 分别为 3.7%、4.8%、2.3%、10.3%。结果表明, 在痕量分析的要求下, 重复性良好, 可以满足检测要求。

7 加样回收率试验

取上述重复性试验所用冬虫夏草样品共 5 份, 每份约 0.5 g, 精密称定, 置消解罐中, 加入混合标准储备液 1 mL, 按“4”项下自“加硝酸 8.0 mL”起操作, 进行测定, 计算加样回收率。结果表明, 各元素加样回收率分别为 Pb 101.8%, Cd 103.9%, As 116.3%, Hg 83.2%, 符合痕量分析要求。

8 样品分析

应用上述实验条件和操作步骤, 采用 ICP-MS 法对收集到的 18 种 58 个批次的动物药中 Pb、Cd、As、Hg 元素的含量进行了测定, 结果见表 2。

金钱白花蛇、壁虎、羚羊角丝及冬虫夏草收集到 1 批样品, 蕲蛇收集到 2 批, 其他品种收集到 3 批以上, 可以从一定程度上反映该品种重金属及有害元素污染的情况。中国药典 2015 年版(一部)对水蛭等动物药重金属及有害元素的限量标准^{[5] 84, 173, 209, 232, 295, 300, 343, 358}: Pb, ≤ 10 mg·kg⁻¹; Cd, ≤ 1 mg·kg⁻¹; As, ≤ 5 mg·kg⁻¹; Hg, ≤ 1 mg·kg⁻¹。按现行药典标准, 动物药重金属及有害元素总体合格率为 74.1%, 其中 Pb、Cd、As、Hg 元素的合格率分别为 91.4%、89.7%、86.2% 和 96.6%。从动物类中药材具体品种及元素种类分析, 地龙和蜂房中铅的残留量超标; 地龙和全蝎中镉的残留量超标; 地龙、水蛭和冬虫夏草中砷的残留量超标; 全蝎和金钱白花蛇中汞的残留量超标。

表 2 18 种动物药中 Pb、Cd、As、Hg 残留量测定结果 (mg · kg⁻¹)

Tab. 2 Determination results of lead, cadmium, arsenic and mercury in 18 types of animal medicines

品种 (types)	批数 (batch number)	重金属及有害元素含量 (content of heavy metals and harmful elements)			
		Pb	Cd	As	Hg
蛤蚧 (Gecko)	4	0.2~3.6	0.02~0.03	0.1~0.2	0.02~0.6
蝉蜕 (Cicadae periostacum)	4	2.1~6.5	0.2~1.0	1.7~5.4	0.02~0.3
土鳖虫 (Eupolyphaga stelcophaga)	4	0.6~1.6	0.03~0.2	0.4~1.9	0.02~0.1
地龙 (Pheretima)	7	5.2~30.6	1.4~2.7	1.2~23.9	0.07~0.4
蜈蚣 (Scolopendra)	4	0.2~1.6	0.2~0.4	0.6~1.0	0.2~1.0
水蛭 (Hirudo)	4	1.0~10.2	0.05~0.2	3.5~7.5	0.06~0.8
乌梢蛇 (Zaocys)	4	0.4~1.5	0.02~0.2	0.1~0.8	0.05~0.2
海马 (Hippocampus)	4	0.3~1.7	0.07~0.3	1.1~2.5	0.01~0.5
全蝎 (Scorpio)	4	0.08~0.9	0.8~1.7	0.5~1.9	0.3~2.1
金钱白花蛇 (Bungarus parvus)	1	0.34	0.10	0.23	2.53
壁虎 (Gekko japonicus Dumeril et Bibron)	1	2.68	0.07	0.22	0.28
九香虫 (Aspongopus)	4	0.7~1.8	0.05~0.4	0.2~4.4	0.09~1.0
僵蚕 (Bombyx batryticatus)	3	0.2~1.9	0.02~0.05	0.3~4.1	0.04~0.2
鳖甲 (Trionycis carapax)	3	0.2~0.5	0.01~0.1	0.2~1.0	0.04~0.3
蜂房 (Vespa nidus)	3	11.1~42.1	0.4~0.9	0.8~2.0	0.03~0.8
蕲蛇 (Agkistrodon)	2	0.3~1.2	0.02~0.03	0.02~0.9	0.8~0.9
羚羊角 (Saigae tataricae cornu)	1	0.24	未检出 (not detected)	未检出 (not detected)	0.08
冬虫夏草 (Cordyceps)	1	1.73	0.09	11.33	1.23

注 (note): 检出限 (detection limit): Pb 0.1 mg · kg⁻¹, Cd 0.02 mg · kg⁻¹, As 0.1 mg · kg⁻¹, Hg 0.02 mg · kg⁻¹

9 讨论

9.1 动物药中重金属及有害元素残留情况高于植物药的原因分析 本文采用的测定方法适用于动物药中重金属及有害元素的测定。作者曾统计过中药材中重金属及有害元素不合格率,涉及的样品包括常见的植物性中药材和部分中成药制剂^[6],将此次动物药重金属及有害元素测定结果与中药中重金属及有害元素筛查结果比较,从统计数据可得,中药中 Pb、Cd、As、Hg 等重金属及有害元素的合格率均在 80% 以上,总体合格率较好,但动物药重金属及有害元素残留量明显高于植物药。原因可能如下:(1)蛋白质、多肽及氨基酸类为动物药的主要成分。重金属元素通过与蛋白质、多肽等生物有机物形成螯合物等形式,影响生理、生化过程^[7]。例如,金属硫蛋白富含半胱氨酸,具有独特的金属硫四面体的络合结构,并

通过整合方式结合有毒游离重金属离子^[8]。再如,As 对细胞中的巯基有很大亲和力,与人体内含巯基的酶结合,从而使酶失活。因此,从生化组成的角度来说,动物更易与重金属结合,在体内积蓄。(2)食物链是贮存于有机物中的化学能在生态系统中层层传导的过程。药材生长过程的主动吸收和富集特性是造成重金属污染的因素之一^[9]。自然界中绿色植物处于生物链的较低端,重金属元素经吸收后从绿色植物沿食物链逐级传递,不断积聚,形成生物放大效应。与绿色植物相比,动物处在生物链的较高端,因此,其重金属及有害元素的积蓄量可能会更高。

9.2 相关建议

(1)加强环境保护,同时对已污染的中药材产地进行修复。对野生动物药资源的保护不仅要保护药用动物本身,更要保护好动物赖以生存的生态环境。

表 3 动物类中药材重金属及有害元素测定结果统计
Tab. 3 Summarization of data for heavy metals and harmful elements in animal medicines

品种 (types)	批数 (batch number)	不合格批数 (unqualified batch number)	超标元素种类 (unqualified elements)
蛤蚧 (Gecko)	4	0	/
蝉蜕 (Cicadae periostracum)	4	0	/
土鳖虫 (Eupolyphaga steleophaga)	4	0	/
地龙 (Pheretima)	7	7	Pb、Cd、As
蜈蚣 (Scolopendra)	4	0	/
水蛭 (Hirudo)	4	1	As
乌梢蛇 (Zaocys)	4	0	/
海马 (Hippocampus)	4	0	/
全蝎 (Scorpio)	4	2	Cd、Hg
金钱白花蛇 (Bungarus parvus)	1	1	Hg
壁虎 (Gekko japonicus Dumeril et Bibron)	1	0	/
九香虫 (Aspongopus)	4	0	/
僵蚕 (Bombyx batryticatus)	3	0	/
鳖甲 (Trionycis carapax)	3	0	/
蜂房 (Vespae nidus)	3	3	Pb
蕲蛇 (Agkistrodon)	2	0	/
羚羊角 (Saigae tataricae cornu)	1	0	/
冬虫夏草 (Cordyceps)	1	1	As

同时,应采取相应的措施对已污染的产地进行修复。其中,化学修复包括向土壤中投入改良剂或抑制剂,通过经氧化还原、沉淀、吸附、络合、拮抗等作用来钝化土壤中的重金属,降低重金属的生物有效性。微生物修复是利用土壤中某些微生物的特性来影响重金属的活性,而这种作用主要是通过生物吸附与生物转化来实现,改变或降低其毒性^[10]。同时,可将多种修复技术综合应用,取长补短,以期达到更好的效果。

(2) 进一步开展元素形态、价态研究。研究表

明,元素的不同存在形态、价态决定了其在环境和生命过程中表现出不同的行为,发挥着不同的作用。重金属及有害元素形态、价态不同,其毒性不同^[11-12]。例如甲基汞的毒性要远高于无机汞,并且具有极强的生物亲和力。对于砷,三价 As 的毒性要大于五价 As; 而有机态的 As 中,甲基砷的毒性要强于其他的有机态 AS,砷甜菜碱、砷胆碱和砷糖等则基本上没有毒性。因此,要全面、客观地评价动物药中重金属及有害元素的毒性,建议在评价总量的同时,针对动物药重金属残留量较高的品种,进一步开展毒性元素的形态、价态分析,为动物药质量安全提供更为科学的数据支持。

(3) 制定科学、合理的动物药重金属限定标准。中国药典 2010 年版一部收录药材及饮片共 616 种,对黄芪、金银花、西洋参、白芍、甘草、丹参、山楂、枸杞子等 8 种植物药,和阿胶 1 种动物药作出重金属限量要求^[13]29, 71, 80, 84, 97, 122, 175, 205, 232。中国药典 2015 年版在此基础上,增加水蛭、蜂胶、牡蛎、蛤壳、珍珠、昆布、海藻、海螵蛸等重金属及有害元素限量检测标准^[5]。科学、适宜的限量标准应在保障公众安全的前提下,能够更好地节约资源,在经济发展与健康风险间取得平衡。因此,建议针对重金属及有害元素残留量较高的品种,如地龙、水蛭、全蝎、蜂房等应进一步积累更广泛的样品筛查数据。同时,考虑到动物药自身的特点和疗效的不可替代性,必要时适度调整用药剂量或制剂方式,制定科学、合理的动物药重金属限量标准。

(4) 加强对动物药的风险评估。限量标准的制定是风险评估的核心目的,但风险评估的范畴远远大于拟定的法定标准^[11]。世界卫生组织 (WHO) 等国际组织定期对重金属及有害元素进行风险评估,且是一个不断完善、不断渐进的过程。建议及时追踪国际相关研究进展,定期评估动物药中重金属及有害元素残留。同时,建议根据动物药的特点,建立动物药使用量、使用模式数据库模型,探讨适用于动物类中药材的评估模式。

参考文献

- [1] 孙艳,赵余庆.药食同源品中重金属的检测方法与思考[J].中草药, 2011, 42(11): 2351
SUN Y, ZHAO YQ. Consideration and detection methods of heavy metals in medicinal and edible goods[J]. Chin Tradit Herb Drugs, 2011, 42(11): 2351
- [2] 金红宇,戴博,田金改,等.中药中外源性有害残留物的控制[J].

- 中国药事, 2007, 21(12): 1013
- JIN HY, DAI B, TIAN JG, *et al.* Control of extrinsic harmful residues in traditional Chinese medicine [J]. *Chin Pharm Aff*, 2007, 21(12): 1013
- [3] 王静, 鞠爱霞. 动物药与药用动物资源的保护与可持续发展 [J]. *黑龙江医药*, 2011, 24(1): 65
- WANG J, JU AX. Protection and dustainable fevelopment foranimal-derived TCM and animal resources for medicines [J]. *Heilongjiang Med J*, 2011, 24(1): 65
- [4] 陈佳, 乔菲, 金红宇, 等. ICP-MS 法测定马钱子中重金属及有害元素含量的不确定度评定 [J]. *药物分析杂志*, 2013, 33(12): 2176
- CHEN J, QIAO F, JIN HY, *et al.* Evaluation of the uncertainty for the determination of heavy metals in Strychni Semen by ICP-MS [J]. *Chin J Pharm Anal*, 2013, 33(12): 2176
- [5] 中国药典 2015 年版. 一部 [S]. 2015: 84, 173, 209, 232, 295, 300, 343, 358
- ChP 2015. Vol I [S]. 2015: 84, 173, 209, 232, 295, 300, 343, 358
- [6] 马双成, 金红宇, 刘丽娜, 等. 中药中外源性有害物质残留风险控制初探 [J]. *中国药学杂志*, 2015, 50(2): 99
- MA SC, JIN HY, LIU LN, *et al.* Control of exogenous harmful residues in traditional Chinese medicines [J]. *Chin Pharm J*, 2015, 50(2): 99
- [7] 孟祥才, 孙 晖, 王振月. 从生物学角度探讨动物药的特点 [J]. *中药材*, 2014, 37(1): 172
- MEN XC, SUN H, WANG ZY. To study the characteristics of animal medicines from the perspective of biology [J]. *Chin Tradit Herb Drugs*, 2014, 37(1): 172
- [8] 李薇, 吴文如, 喻良文, 等. 重金属污染环境中的动物的解毒策略和机制的研究进展 [J]. *中草药*, 2009, 40(10): 1674
- LI W, WU WR, YU LW, *et al.* Advances in studies on detoxification and its mechanism for animals living in environment polluted by heavy metals [J]. *Chin Tradit Herb Drugs*, 2009, 40(10): 1674
- [9] 赵连华, 杨银慧, 胡一晨, 等. 我国中药材中重金属污染现状分析及对策研究 [J]. *中草药*, 2014, 45(9): 1199
- ZHAO LH, YANG YH, HU YC, *et al.* Current situation analysis and countermeasures on contamination of heavy metal in traditional Chinese medicinal materials in China [J]. *Chin Tradit Herb Drugs*, 2014, 45(9): 1199
- [10] 吴晓波, 薛健. 中药重金属污染的现状及治理对策概况 [J]. *江苏中医药*, 2010, 42(6): 77
- WU XB, XUE J. Current situation of heavy metal pollution in traditional Chinese medicines and the countermeasures [J]. *Jiangsu Tradit Chin Med*, 2010, 42(6): 77
- [11] 张普敦, 许国旺, 魏复盛. 砷形态分析方法进展 [J]. *分析化学*, 2001, 29(8): 971
- ZHANG PD, XU GW, WEI FS. Recent study of the analytical methods in arsenic speciation [J]. *Chin J Anal Chem*, 2001, 29(8): 971
- [12] 李丽敏, 夏晶, 王欣美, 等. HPLC-ICP-MS 法研究 5 种含雄黄中成药的可溶性砷及其形态 [J]. *中成药*, 2012, 34(11): 2118
- LI LM, XIA J, WANG XM, *et al.* Speciations of soluble arsenic in five Chinese patent medicines by HPLC-ICP-MS [J]. *Chin Tradit Pat Med*, 2012, 34(11): 2118
- [13] 中国药典 2010 年版. 一部 [S]. 2010: 29, 71, 80, 84, 97, 122, 175, 205, 232
- ChP 2010. Vol I [S]. 2010: 29, 71, 80, 84, 97, 122, 175, 205, 232

(本文于 2016 年 2 月 27 日收到)