

· 资源与鉴定 ·

无机元素在土壤与忍冬不同器官药材的相关分析

马艳, 张百霞, 郭庆梅*, 周凤琴, 张永清
(山东中医药大学药学院, 济南 250355)

[摘要] 目的:研究不同产地忍冬不同器官所含特征性无机元素及与其生境土壤无机元素的关系。方法:采用原子吸收分光光度法及电感耦合等离子体质谱法测量忍冬不同器官及其生境土壤的无机元素含量;采用 SPSS 19.0 对实验数据进行相关性分析和主成分分析。结果:主成分分析确定了忍冬不同器官及生境土壤的特征标识元素;忍冬不同器官对无机元素进行选择性吸收其与生境土壤无机元素未见明显相关。结论:本研究为忍冬不同器官药材质量控制研究提供实验依据。

[关键词] 忍冬;无机元素;主成分分析

[中图分类号] R284.1;R931.71 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1005-9903(2015)06-0069-05

[doi] 10.13422/j.cnki.syfjx.2015060069

Correlation Analysis of Inorganic Elements Between Planting Soil and Different Organs of *Lonicera japonica* MA Yan, ZHANG Bai-xia, GUO Qing-mei*, ZHOU Feng-qin, ZHANG Yong-qing (College of Pharmacy, Shandong University of Traditional Chinese Medicine, Ji'nan 250355, China)

[Abstract] **Objective:** To study the contents and distribution of inorganic elements in *Lonicera japonica* from different habitats, and analyze the correlations between planting soil. **Method:** The content of inorganic elements in different parts of *L. japonica* was determined by atomic absorption spectroscopy and inductively coupled plasma mass spectrometry. The principal component analysis and cluster analysis were conducted by SPSS 19.0. **Result:** Zn, Fe, K, Cu, Cr and Cd were the characteristic elements of *L. japonica*. **Conclusion:** This paper is providing useful information for the quality control of *L. japonica*.

[Key words] *Lonicera japonica*; inorganic elements; principal component analysis

忍冬科植物忍冬的花及藤枝是常用的清热解毒中药,分别作为金银花及忍冬藤收载于 2010 年版《中国药典》^[1];忍冬叶也作为中药金银花叶收载于《山东省中药材标准》^[2]。土壤无机元素对药材无机元素及其活性成分的影响^[3-6],近年来学者也时有关注。金银花所含无机元素含量^[7-8]及生境土壤对金银花质量的影响^[9]均有报道,但来源于忍冬植株不同器官药材的无机元素与不同产地生境土壤的关联未见系统报道。本文在对金银花主产区种质资源调查的基础上^[10],测定不同产地忍冬不同器官及生境土壤中 13 种无机元素的含量,采用主成分分析法分析忍冬不同器官中的特征无机元素,探讨所测

无机元素在忍冬不同器官及生境土壤中的关系,为忍冬不同器官药材质量研究提供参考依据。

1 材料

1.1 样品 土壤样品于 2011 年 5 月采自金银花 4 个主产区,各产区以梅花形布点采集距地面 20 ~ 40 cm 耕层土,及时风干后,用木制器具研磨,充分混合后采用四分法留取 1 kg 土壤样品,过 60 目筛,于聚乙烯塑料瓶中避光贮存备用;同时采集忍冬不同器官样品,样品取回后经山东中医药大学周凤琴教授鉴定,均为忍冬科植物忍冬 *Lonicera japonica* 的花蕾、藤枝及叶,本实验所用样品均为大毛花系列。样品用自来水洗净,蒸馏水冲洗 2 遍,置恒温干燥箱

[收稿日期] 20140330(004)

[基金项目] 国家“十二五”科技发展计划项目(2011BAI06B01);国家自然科学基金项目(30973879);山东省自主创新专项(2013CXC20401)

[第一作者] 马艳,博士,讲师,从事中药质量控制与资源研究,Tel:0531-89628173,E-mail:sdutemyaohua@163.com

[通讯作者] *郭庆梅,博士生导师,教授,从事中药质量控制与资源研究,Tel:0531-89628172,E-mail:qmguo@sina.com

(80 ℃) 中干燥, 粉碎过 60 目筛, 置干燥器中备用。土壤样品中 T-4 为麻骨岩风化后形成的土壤, 在平邑属于小区环境; T-5 为棕壤性土, 土壤中沙土比分别为 43.1%, 39.63%, 将沙和土分离, 仅对土进行分析。样品信息见表 1。

表 1 忍冬植株及土壤样品

Table 1 Samples information of *Lonicera japonica* and plangting soil

植物样品		土壤样品	采集地点
编号	品种		
JL	巨花一号	T1	河北邢台市巨鹿县
FQ	金丰一号	T2	河南新乡市封丘县
XM	毛花	T3	河南郑州市新密市
PY-1	大毛花	T4	山东平邑县西石龙口村
PY-2	大毛花	T5	山东平邑县郑城镇

1.2 仪器 ETHOSD 型微波消解仪 (意大利 Milestone 公司), LWY84B 型控温式远红外消煮炉 (四平电子技术研究所); S4AA 型 Spectrometer 原子吸收分光光度计, XSERIES2 型电感耦合等离子体质谱 (美国热电公司)。

1.3 主要试剂 锌 (Zn), 磷 (P), 钾 (K), 铜 (Cu), 镁 (Mg), 铁 (Fe), 锰 (Mn), 镍 (Ni), 铬 (Cd), 镉 (Cr), 铅 (Pb), 钼 (Mo), 钴 (Co) 13 种元素标准溶液 (国家标准物质研究中心, 质量浓度 1 000 mg · L⁻¹); 30% 过氧化氢、高氯酸、浓硝酸均为优级纯。

表 2 忍冬不同器官中无机元素含量

Table 2 Contents of inorganic elements in different organs of *Lonicera japonica*

器官	编号	Zn	Mn	Fe	K	Mg	Cu	Cr	Co	Ni	P	Mo	Cd	Pb
金银花	JL	24.25	63.51	445.20	19 709.73	571.04	13.95	0.96	0.35	1.82	0.38	0.36	0.10	2.25
	FQ	22.48	36.62	182.30	18 762.75	575.88	12.30	0.77	0.39	3.08	0.44	0.66	0.13	1.80
	XM	22.29	27.63	143.59	15 685.23	577.27	14.88	0.72	0.20	3.02	0.39	0.13	0.14	1.48
	PY-1	24.27	49.04	195.07	16 818.64	571.89	10.58	0.78	0.37	3.06	0.37	0.10	0.17	0.86
	PY-2	27.39	52.50	121.22	17 262.10	548.78	15.20	0.55	0.29	0.25	0.38	0.12	0.22	0.76
忍冬叶	JL	23.95	243.77	228.26	25 928.78	879.80	18.32	1.61	0.22	1.72	0.32	0.42	0.10	2.08
	FQ	23.16	172.47	287.30	10 449.41	786.34	12.09	5.12	0.20	2.06	0.28	0.73	0.11	1.93
	XM	24.63	211.84	275.44	18 378.15	1 036.59	10.51	1.05	0.18	1.56	0.17	0.14	0.13	2.86
	PY-1	24.34	270.18	202.15	6 797.48	685.04	7.71	0.64	0.21	1.86	0.20	0.11	0.13	1.12
	PY-2	31.02	643.10	169.87	8 657.38	535.75	12.56	0.61	0.18	2.16	0.20	0.11	0.14	0.90
忍冬藤	JL	20.90	209.34	97.98	6 301.16	163.71	3.82	1.92	0.18	1.11	0.17	0.23	0.10	0.52
	FQ	17.94	28.66	135.75	11 749.70	266.11	13.08	3.28	0.14	0.99	0.17	0.24	0.10	0.72
	XM	17.79	26.16	105.78	11 633.89	220.15	8.13	2.55	0.10	0.76	0.08	0.07	0.14	0.92
	PY-1	9.45	17.58	56.93	6 560.25	120.40	9.13	1.57	0.13	0.76	0.10	0.07	0.14	0.44
	PY-2	14.90	34.56	57.68	296.25	143.33	8.73	1.02	0.14	1.23	0.10	0.08	0.18	0.43

2 方法

2.1 Zn, Mn, Fe, K, Cu, Mg 的测定 取样品约 0.5 g, 精密称定, 置具塞玻璃管中, 加入浓硝酸-高氯酸溶液 (4:1) 放置过夜, 放于消煮炉上低温 (约 120 ℃) 消解, 待棕红烟冒尽后, 再补加混酸 1 mL, 并加过氧化氢多次, 继续加热并逐步将温度提高到 220 ℃, 至试管中液体澄清透明时停止加热, 放冷, 转入 50 mL 量瓶中用去离子水洗涤试管壁多次, 洗液合并于量瓶中, 并用去离子水定容至刻度。同法同时制备试剂空白溶液。采用原子吸收分光光度法进行含量测定。

2.2 Mo, Cr, Ni, Co, P, Pb, Cd 的测定 取样品约 0.2 g, 精密称定, 置于消解罐, 加浓硝酸 6 mL, 120 ℃ 预消解 24 h; 加浓硝酸 2 mL, 过氧化氢 2 mL, 210 ℃ 微波消解; 140 ℃ 蒸至 1 ~ 2 mL, 转移并定容至 25 mL 量瓶中。同法同时制备试剂空白溶液。采用电感耦合等离子体质谱法进行含量测定。

2.3 数据分析 实验数据使用 SPSS 19.0 软件进行相关分析和主成分分析。

3 结果与分析

3.1 不同产区忍冬不同器官中无机元素的比较 采收期忍冬各器官无机元素的含量在不同产区分布规律相似, K 含量最高, 其次是 Mg; 生境土壤中含有最高的是 Fe, 其次是 K; Mo, Cd, Pb 等最低; 但各元素在各产区间含量无明显规律。见表 2。

金银花的道地产区,河南封丘产金银花中 Co, Ni, P, Mo 含量居首,其中有益微量元素 Mo 更是山东平邑(麻骨岩土壤)产金银花含量的 6.6 倍,含量差别悬殊;山东平邑郑城镇(棕性土壤)产品中 Fe, Cr, Pb 含量最低;非道地产区,河北巨鹿产金银花中 Mn, Fe, K, Cr, Pb 含量最高,其他元素在各产区金银花中含量差别不大。

无机元素含量在不同产区忍冬叶中差别较金银花中大得多。道地产区河南封丘产忍冬叶中 Cr, Mo 含量最高, Mn 在山东平邑产区含量最高,重金属 Pb 在河南新密中含量最高;K 含量是非道地产区河北巨鹿产区最高;各产区忍冬叶中含量差别最小的是 Co。

无机元素在忍冬藤中分布与在花及叶中明显不同。河北巨鹿产区 Mn 含量最高,是道地产区山东

平邑产区(麻骨岩土壤)的 12 倍,差别居首;含量差别次之的有 Cu, Cr, Mo, 且均是河南封丘忍冬藤中含量最高,其他各元素在不同产区差别稍小。

本实验所测无机元素含量表明各产区生境土壤中无机元素在空间分布上表现出不同程度的差异性。道地产区山东平邑两个产区因地貌的不同,其无机元素含量差别最大,除 Mn, Ni, Mo, Cd, Pb 外,其他 8 种无机元素山东平邑(棕性土壤)含量均最高,除 Fe, Mo, Pb 外,山东平邑(麻骨岩土壤)其他 10 种元素含量最低;Cu, P 的含量在所测无机元素含量中差别最大;其次为 Mg 的含量;含量差别最小的为 Fe,其中河北巨鹿产区的含量较低。本实验所测重金属元素 Cu, Ni, Cr, Cd 和 Pb,其含量均符合国家土壤环境质量标准(GB15618-2008),属于一级土壤。见表 3。

表 3 不同忍冬生境土壤无机元素含量

Table 3 Contents of inorganic elements in planting soil of *Lonicera japonica*

编号	Zn	Mn	Fe	K	Mg	Cu	Cr	Co	Ni	P	Mo	Cd	Pb
T-1	48.59	323.94	8 673.59	5 315.81	268.84	9.14	66.80	10.60	26.20	901.80	0.64	0.13	19.70
T-2	43.94	350.76	9 052.45	4 832.17	295.70	11.11	55.30	10.60	25.40	809.60	0.58	0.14	20.83
T-3	49.01	382.77	11 038.30	5 337.73	320.74	17.24	64.20	15.60	27.10	415.60	0.92	0.16	26.80
T-4	31.83	178.33	8 999.64	2 789.33	263.84	9.03	44.00	10.60	18.40	279.10	0.76	0.07	25.17
T-5	71.52	351.23	11 583.84	6 603.68	1 010.80	46.50	68.90	22.30	25.20	1391.00	0.76	0.10	15.64

mg·kg⁻¹

3.2 无机元素在忍冬不同器官及生境土壤中的相关性 虽然山东平邑的两个土壤样品(麻骨岩土壤和棕性土壤)所含无机元素含量差别最大,但这两产区的忍冬各器官所测无机元素含量并没有因此全部出现极大差距。由此可以推测,忍冬植株中的无机元素受生境土壤中无机元素影响并不显著。

3.2.1 无机元素在金银花及生境土壤中的相关性 无机元素在金银花及生境土壤中的相关性见表 4,金银花和生境土壤中的无机元素多数呈负相关,只有其中 9 对元素呈现显著相关。K_花-Mo_土, Mg_花-Mg_土, Mg_花-Cu_土, Co_花-Mo_土, Ni_花-Zn_土, Ni_花-Mg_土, Ni_花-P_土 共 7 对均呈显著负相关(P < 0.05),说明这些元素之间具有一定程度的拮抗作用;Cu_花-K_土 正显著相关, Cu_花-Cr_土 极显著正相关(P < 0.01),说明花中的 Cu 可能存在被动吸收的情况,要注意土中的 K 对花中 Cu 的被动污染。

3.2.2 无机元素在忍冬藤及生境土壤中的相关性 忍冬藤与生境土壤中的无机元素相关性不大,仅有 4 对呈现显著相关。Ni_藤-P_土 极显著正相关, Ni_藤-Cd_土 极显著负相关; Zn_藤-Ni_土 正显著相关; P_藤-

Mo_土 显著负相关。

3.2.3 无机元素在忍冬叶及生境土壤中的相关性 忍冬叶与生境土壤中的无机元素有 6 对呈正相关。Zn_叶 及 Mn_叶 与 Mg_土 呈极显著正相关而与 Cu_土 呈显著正相关; Pb_叶-Cd_土, Zn_叶-Co_土 显著正相关; 仅 Co_叶-Fe_土 呈显著负相关。

分析结果显示土壤中的有害元素 Cd 与 Pb 对金银花中的无机元素无明显影响,但 Pb 抑制忍冬藤中 Ni 的含量, Cd 能促进忍冬叶对 Pb 的吸收。植物从土壤中摄取无机元素,因此要监控土壤中 Cd 与 Pb 的动态含量以确保植物样品的有害元素在国标范围内。

3.3 主成分分析 忍冬各器官及其生境土壤的主成分分析碎石图及成分图见图 1, 2。

数据经 SPSS 处理,金银花、忍冬叶、忍冬藤及生境土壤前 3 个主成分累计贡献率由 87.063% 到 98.220% 依次增大,值均大于 1,它们代表了忍冬不同器官及生境土壤中无机元素的绝大部分信息。由图 2 可知,金银花中 Mg, Cr, Cd, Pb 为金银花的第一主成分, Zn, Mn, Cd 为忍冬叶的第一主成分,忍冬藤

表 4 金银花无机元素与土壤无机元素相关性

Table 4 Correlation analysis of inorganic elements between in the plangting soil and in the Flos Lonicerae

花 土	Zn	Mn	Fe	K	Mg	Cu	Cr	Co	Ni	P	Mo	Cd	Pb
Zn	0.673	0.168	-0.226	-0.010	-0.811	0.849	-0.617	-0.430	-0.884 *	-0.082	-0.179	0.518	-0.207
Mn	-0.127	-0.359	-0.111	0.048	-0.081	0.832	-0.230	-0.537	-0.264	0.453	0.297	-0.141	0.383
Fe	0.413	-0.348	-0.680	-0.657	-0.574	0.727	-0.855	-0.799	-0.513	-0.193	-0.544	0.686	-0.557
K	0.406	0.058	-0.072	0.115	-0.568	0.932 *	-0.410	-0.473	-0.730	0.110	0.039	0.208	0.114
Mg	0.856	0.210	-0.449	-0.171	-0.956 *	0.564	-0.811	-0.269	-0.886 *	-0.211	-0.354	0.833	-0.590
Cu	0.791	0.096	-0.511	-0.275	-0.912 *	0.636	-0.851	-0.400	-0.846	-0.208	-0.400	0.826	-0.593
Cr	0.329	0.163	0.169	0.158	-0.441	0.963 **	-0.174	-0.538	-0.677	-0.062	-0.043	0.009	0.279
Co	0.684	-0.043	-0.555	-0.436	-0.816	0.723	-0.857	-0.601	-0.764	-0.263	-0.509	0.785	-0.585
Ni	-0.163	-0.213	0.128	0.189	-0.004	0.831	-0.012	-0.492	-0.252	0.372	0.322	-0.319	0.557
P	0.712	0.449	0.026	0.421	-0.804	0.592	-0.386	0.045	-0.892 *	0.090	0.160	0.375	-0.028
Mo	-0.010	-0.460	-0.480	-0.913 *	-0.027	0.363	-0.427	-0.881 *	0.038	-0.518	-0.817	0.348	-0.476
Cd	-0.613	-0.526	0.090	0.060	0.457	0.541	0.183	-0.460	0.243	0.535	0.429	-0.575	0.668
Pb	-0.752	-0.601	-0.127	-0.550	0.797	-0.386	0.278	-0.276	0.861	-0.064	-0.213	-0.355	0.033

注: * 两种元素间有显著相关性; ** 两种元素有极显著相关性。

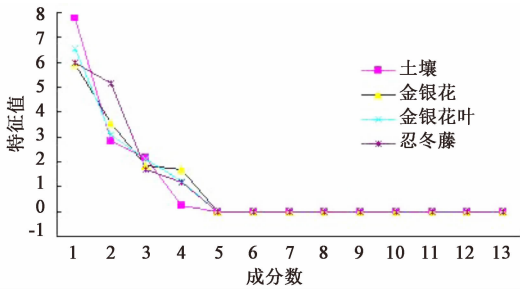


图 1 金银花、忍冬藤、忍冬叶、土壤主成分分析碎石
Fig.1 Scree Plots of PCA of plangting soil and different organ of *Lonicera japonica*

中第一主成分为 Fe, Mg, Cr; 第二主成分分别是金银花 (Zn, Mn, Fe, K, Ni), 忍冬叶 (Mg, Ni, P), 忍冬藤 (Mn, Co); 第三主成分反映的是金银花 (Co), 忍冬叶 (K, Cu, Cr), 忍冬藤 (Cu) 元素的指标信息。由于第一主成分的贡献率均较大, 所以忍冬各器官的第一主成分可作为它们的特征标识元素。忍冬植株生境土壤中 Zn, K, Mg, Cu, Cr, Co, P 的相关系数较大,

为第一主成分也是特征标识元素。统计数据显示, 有害元素 Cr, Cd, Pb 成为忍冬不同器官的特征标识性元素。实际种植中要参考土壤无机元素对忍冬植株无机元素的相关性来施肥, 严格控制这些有害元素的含量。

4 结论

产地是影响中药材质量的重要因素, 具有明显的本草学特点。产地所有的生态因子均与药材质量有关, 包括土壤、气温、降雨、光照、生态群落构成等, 故产地是中药材质量研究的不可或缺的部分。

分析数据表明, 不同产区忍冬各器官中无机元素分布规律相似, 但含量差异显著且各产区中无明显规律, 这可能是由产区土壤状况及遗传因素造成的。对生境土壤和忍冬不同器官中的无机元素进行相关分析得知, 生境土壤对金银花中某些元素的含量有明显的影 响, 对忍冬藤及忍冬叶中无机元素含

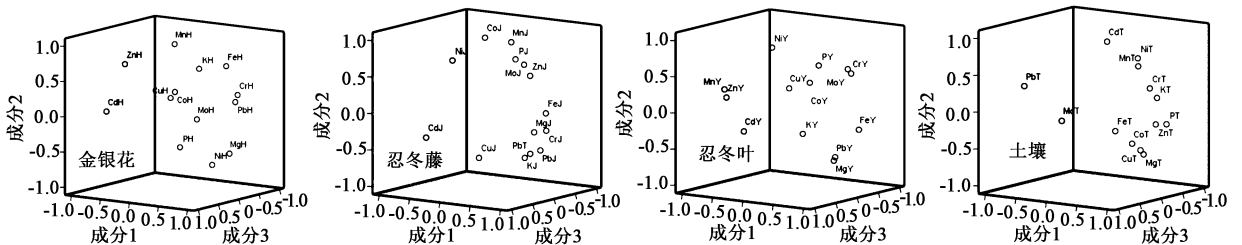


图 2 金银花、忍冬藤、忍冬叶、土壤主成分分析
Fig.2 Component Plots of PCA of plangting soil and different organ of *Lonicera japonica*

量影响不大;对数据进行主成分分析,13 种无机元素指标均降维为 3 个主成分,但忍冬各器官及生境土壤的特征标识元素不尽相同,Mg,Cr 是金银花、忍冬藤和生境土壤的共同特征标识元素,也可能是来源于忍冬的药材地道性成因的重要因子之一。本实验为进一步完善忍冬药材无机元素指纹图谱提供了重要依据。

[参考文献]

[1] 国家药典委员会. 中华人民共和国药典. 一部[S]. 北京:中国科技医药出版社, 2010:205,179.
[2] 山东省药品监督管理局. 山东省中药材标准[S]. 济南:山东友谊出版社,2002:133.
[3] 赵曼茜,吕金嵘,杨光,等. 土壤无机元素对赤芍无机元素及芍药苷含量的影响[J]. 中国实验方剂学杂志, 2009, 15(10):38-42.
[4] 尹海波,张因,康廷国. 穿龙薯蓣药材和土壤无机元素的相关性分析[J]. 中国实验方剂学杂志, 2011,

17(19):137-141.

[5] 赵曼茜,吕金嵘,郭兰萍,等. 土壤无机元素对黄芩无机元素及黄芩苷含量的影响[J]. 中国实验方剂学杂志, 2010, 16(9):103-106.
[6] 严辉,段金殿,钱大玮,等. 不同产地当归药材及其土壤无机元素的关联分析与探讨[J]. 中药材,2011,34(4):512-516.
[7] 张重义,李萍,陈君,等. 金银花道地与非道地产区土壤微量元素分析[J]. 中国中药杂志,2003,28(3):18-24.
[8] 王枚博,夏晶,王欣美,等. 金银花等 10 种中药材中 15 种无机元素分布规律及其相关性研究[J]. 中国药理学杂志,2012,47(8):620-625.
[9] 赵才政. 无机元素对金银花产量质量影响的研究[D]. 济南:山东中医药大学,2009.
[10] 周凤琴,李佳,冉蓉,等. 我国金银花主产区种质资源调查[J]. 现代中药研究与实践,2010,24(3):21-25.

[责任编辑 顾雪竹]

《中国医药导报》杂志 欢迎订阅 欢迎投稿

《中国医药导报》杂志是国家卫生和计划生育委员会主管、中国医学科学院主办的医药卫生期刊,现为旬刊,国内统一刊号 CN11-5539/R,国际标准刊号 ISSN1673-7210,邮发代号 80-372。本刊系中国科技核心期刊(中国科技论文统计源期刊)、美国化学文摘(CA)收录期刊、解放军医学图书馆中文生物医学期刊文献数据库收录期刊,万方数据、中国知网、中文科技期刊全文数据库全文收录期刊。每期定价 20 元,全年 36 期优惠价 540 元。

本刊设专家论坛、综述、论著、实验研究、药理与毒理、临床研究、药物与临床、麻醉与镇痛、医学检验、病理分析、影像与介入、病例报告、医疗器械、中医中药、生物医药、药品检验、制剂与技术、药师与临床、不良反应监测、药物经济学、调查研究、护理研究、教育研究、科研管理、法规与标准、卫生研究、医疗管理、产业与市场、医药监管、工作探讨等栏目。是广大医药卫生科研、教育、医护、药事、经营管理等人员了解医药研究进展、发展动态,展示医药科研成果,学习先进经验,探讨工作难题,交流和提高业务学术水平的得力助手,也是发表医药学术论文的阵地。本刊订户凭订阅单复印件投稿优先发表。

社址:北京市朝阳区通惠家园惠润园(壹线国际)5-3-601 邮编:100025

投稿热线:010-59679061 59679063 发行热线:010-59679533

传真:010-59679056 投稿邮箱:yydb@vip.163.com

网址:www.yiyaodaobao.com.cn