

## 中藥材中有機氯劑農藥殘留檢驗(VI)

徐雅慧 陳儀驊 劉芳淑 劉宜祝 羅吉方 林哲輝

研究檢驗組

### 摘要

中藥材有機氯劑農藥限量標準係中藥品質管制重要規範之一，本計畫以氣相層析儀/電子捕獲偵測器法(GC/ECD)進行附子、青皮、苦參、莢朮、黃耆、款冬花、豬苓、栝樓根、天麻、高良薑、獨活、升麻、川貝母及紅參14種中藥材之aldrin、BHC、chlordane、DDT、dicofol、dieldrin、endosulfan、endrin、heptachlor、hexachlorobenzene及PCNB 11種有機氯劑農藥殘留量檢測，並以氣相層析質譜儀(GC/MS)再確認。結果顯示，14種中藥材，每品目各20件，共280件檢體中，附子、苦參、莢朮、天麻、高良薑、獨活、升麻及川貝母8種藥材均未檢出有機氯劑農藥殘留；紅參檢體20件檢出PCNB 0.047~16.610 ppm，18件檢出hexachlorobenzene 0.004~1.224 ppm，其中6件超出PCNB限量標準1.0 ppm；青皮17件檢出dicofol 0.083~5.789 ppm、栝樓根2件檢出DDT皆為0.007 ppm、豬苓1件檢出chlordane 0.067 ppm、黃耆1件檢出DDT 0.016 ppm及款冬花1件檢出hexachlorobenzene 0.006 ppm。本計畫結果提供制定管制標準參考。

**關鍵詞：**中藥材、有機氯劑農藥殘留、aldrin、BHC、chlordane、DDT、dicofol、dieldrin、endosulfan、endrin、heptachlor、hexachlorobenzene、PCNB

### 前言

中藥使用日趨頻繁，但因其來源複雜，且產地、基原、採收期、使用部位、野生種或栽培種、貯藏等因素皆易造成品質良莠不齊，其肝毒性、藥材誤用、重金屬、農藥及微生物之污染、缺乏標準等安全問題備受矚目<sup>(1-3)</sup>。中藥材產量常常供不應求，爲了防止病蟲害的發生並提高產量，致使農藥之使用大爲提高，雖然行政院衛生署歷年來公布了一系列禁用之農藥，但有機氯劑農藥毒性大且半衰期長，易殘留於土壤之中，透過食物鏈之蓄積，對人體之健康有極大影響，因此各國陸續進行農藥殘留的評估及調查<sup>(4-8)</sup>。

國內中藥材大都仰賴進口，來源分歧，無法由產地掌控藥材之品質，爲避免中藥材有機氯劑農藥殘留量過高而影響民眾健康，宜訂定中藥材

之有機氯劑農藥殘留量來確保用藥安全，我國已針對人參等15種中藥材訂定BHC總量、DDT總量及PCNB (quintozene) 3種有機氯劑農藥殘留限量標準<sup>(9,10)</sup>。目前世界各國各自訂有農藥之限量標準，例如日本藥局方規定人參等14種中藥材之BHC總量及DDT總量分別不得超出0.2 ppm<sup>(11)</sup>；中國大陸規定甘草與黃耆之BHC總量、DDT總量與PCNB分別不得超出0.2 ppm、0.2 ppm與0.1 ppm<sup>(12)</sup>；香港與美國針對部分中藥材訂定DDT等10種有機氯劑農藥殘留限量標準<sup>(13,14)</sup>；歐盟尚無中藥材之限量標準，故參考歐洲藥典記載有機氯劑農藥殘留一般規範<sup>(15)</sup>；各國之限量標準詳列於表一。由表一可知，各國訂定標準之藥材品目不同，有機氯劑農藥之項目、限量也有差異，故其適用性仍須進一步審慎評估。爲訂定我國中藥材有機氯劑農藥殘留限量標準，進行中藥材中有機

表一、各國中藥材中有機氯劑農藥殘留限量標準

國家	限量標準 (ppm)	BHC 總量	DDT 總量	PCNB	Aldrin + Dieldrin	BHC ( $\alpha, \beta, \delta$ )	$\gamma$ -BHC	Hexachloro- benzene	Chlordane	Endrin	Heptachlor
台灣 <sup>1</sup>											
藥典、公告 <sup>(1)</sup>		0.2	0.2								
公告 <sup>(2)</sup>		0.9	1.0	1.0							
大陸 <sup>2</sup>		0.2	0.2	0.1							
日本 <sup>3</sup>		0.2	0.2								
香港 <sup>4</sup>			1.0	1.0	0.05	0.3	0.6	0.1	0.05	0.05	0.05
歐盟 <sup>5</sup>			1.0	1.0	0.05	0.3	0.6	0.1	0.05	0.05	0.05
美國 <sup>6</sup>			1.0	1.0	0.05	0.3	0.6	0.1	0.05	0.05	0.05

## 1. 台灣：

(1)中華藥典(番瀉葉)；98.07.22行政院衛生署公告(山茱萸、紫蘇葉、大棗、陳皮、枇杷葉、牡丹皮、遠志、細辛、肉桂、桂皮、桂枝、番瀉葉)。

(2)95.11.10行政院衛生署公告(人參、甘草、黃耆、番瀉葉)。

## 2. 大陸：中華人民共和國藥典2005年版(甘草、黃耆)。

3. 日本：日本藥局方15版(番瀉葉、遠志、黃耆、甘草、人參、山茱萸、大棗、牡丹皮、紅參、桂皮、陳皮、細辛、紫蘇葉、枇杷葉)。

4. 香港：香港中藥材標準第一冊(牡丹皮、關黃柏、川黃柏、當歸、黃耆、人參、三七、丹參、澤瀉)。

5. 歐盟：歐洲藥典6.0版(蘆薈、枳實、丁香、刺五加、茴香、薑、銀杏葉、人參、甘草、亞麻子、沒藥、鴉片、薄荷葉、大黃、番瀉葉、八角茴香、桂皮、山楂、昆布、益母草)。

6. 美國：USP (The United States Pharmacopeia) 2009年版(刺五加、薑、銀杏、西洋參、人參、甘草)。

氯劑農藥殘留調查為首要工作。

93~97年度已完成桂皮等84種中藥材之有機氯劑農藥殘留檢驗<sup>(16-20)</sup>，98年度選擇附子、青皮、苦參、莪朮、黃耆、款冬花、豬苓、栝樓根、天麻、高良薑、獨活、升麻、川貝母及紅參14品目進行檢驗。其中紅參藥材，曾於93年進行檢測，然20件檢體中，15件檢體之BHC總量含量大於0.9 ppm，5件PCNB含量大於1 ppm，不合格率達75%，故98年度再度採購紅參進行檢驗，以瞭解現今紅參農藥殘留情形。上述附子等14品目共280件檢體，委託財團法人台北市瑠公農業產銷基金會農業檢驗中心利用氣相層析儀/電子捕獲偵測器法(GC/ECD)進行aldrin、BHC ( $\alpha$ -BHC、 $\beta$ -BHC、 $\gamma$ -BHC及 $\delta$ -BHC之和)、chlordane (*cis*-、*trans*-及oxychlordane之和)、DDT (*p,p'*-DDT、*o,p'*-DDT、*p,p'*-DDE及*p,p'*-TDE之和)、dicofol、dieldrin、endosulfan (endosulfan isomers及endosulfan sulfate之和)、endrin、

heptachlor (heptachlor及heptachlor epoxide之和)、hexachlorobenzene、quintozone (quintozone、pentachloroaniline及methyl pentachlorophenyl sulphide之和) 11種有機氯劑農藥檢測，並以氣相層析質譜儀(GC/MS)再確認。執行期間以混和標準品溶液進行查核，並執行實驗室實地查核，以確保檢驗數據之品質。本計畫所得之數據將提供行政管理單位作為制定限量標準之參考依據。

## 材料與方法

### 一、材料

#### (一)檢體

民國98年1月~98年4月間，於中藥廠及北區中藥房價購附子(Aconiti Lateralis Praeparata Radix)、青皮(Citri Reticulatae Pericarpium Viride)、苦參(Sophorae Flavescens Radix)、莪朮(Curcumae Rhizoma)、黃耆(Astragali Radix)、款冬花(Farfarae Flos)、

豬苓(Polyporus)、栝樓根(Trichosanthis Radix)、天麻(Gastrodiae Rhizoma)、高良薑(Alpiniae Officinari Rhizoma)、獨活(Angelicae Pubescentis Radix)、升麻(Cimicifugae Rhizoma)、川貝母(Fritillariae Cirrhosae Bulbus)、紅參(Red Ginseng) 14種中藥材，每一檢體逐一確定基原後，各品目取20件檢體，共計280件，試驗前委由勝昌製藥廠粉碎，並過20號篩備用。

#### (二)對照用標準品

1. Aldrin、 $\alpha$ -BHC、 $\beta$ -BHC、 $\gamma$ -BHC、 $\delta$ -BHC、*cis*-chlordane、*trans*-chlordane、*o,p'*-DDT、*p,p'*-DDT、*p,p'*-DDE、*p,p'*-TDE、dieldrin、endosulfan isomers、endrin、heptachlor、hexachlorobenzene、quintozene、pentachloroaniline及methyl pentachlorophenyl sulphide (Dr. Ehrenstorfer GmbH)。
2. Dicofol、endosulfan sulfate及heptachlor epoxide (Sigma-Alorich)。
3. Oxychlordane (Chem Service)。

#### (三)試藥

丙酮、正己烷、石油醚及二氯甲烷採用殘留級，氯化鈉採試藥特級，無水硫酸鈉採試藥級。

#### (四)裝置與器具

1. 5A濾紙(直徑9 cm及11 cm)、布赫納漏斗、抽氣瓶(500 mL)、稱量瓶、分液漏斗(500 mL)、有蓋玻璃量筒(250 mL)、濾膜(0.45  $\mu$ m, Nylon材質)、圓底瓶(300 mL及500 mL)、矽酸鎂固相萃取匣(500 mg/6 mL)、錐形瓶(250 mL)。
2. 減壓濃縮裝置。
3. 均質機。
4. 粉碎機。

#### (五)儀器設備

1. 氣相層析儀附電子捕捉偵測器(GC/ECD) (Varian 3600)。
2. 氣相層析質譜儀(GC/MS) (Agilent Technologies 5975)。

## 二、方法

### (一)乾燥減重<sup>(21)</sup>

先將稱量瓶於烘箱內以105°C乾燥1小時，於乾燥器內放冷，精確稱量。取檢體約5 g，置於已知重量之稱量瓶中，精確稱量，於烘箱內以105°C乾燥5小時，於乾燥器內放冷，稱量。繼續以105°C乾燥，每隔1小時稱量一次，直到先後二次之減重相差不超過0.25%為止，由其減失之重量計算檢體乾燥減重百分率。

### (二)標準品溶液配製

取各有機氯劑農藥標準品約50 mg，精確稱定，分別置於50 mL容量瓶中，以正己烷溶解並定容之。取此溶液共置於容量瓶中，以正己烷稀釋至適當濃度，供作混合標準品溶液。*o,p'*-DDT、endosulfan、dicofol及 $\beta$ -BHC之標準曲線濃度範圍為0.005~2  $\mu$ g/mL，*p,p'*-DDT之標準曲線濃度範圍為0.004~0.08  $\mu$ g/mL，其餘農藥之標準曲線濃度範圍為0.002~0.04  $\mu$ g/mL。

### (三)檢液之調製

#### 1. 萃取：

精確稱取檢體10 g，置入錐形瓶，加水40 mL混勻，靜置10分鐘，加丙酮100 mL，以均質機均質1分鐘，倒入布赫納漏斗抽氣過濾，以丙酮洗滌濾餅，合併濾液，以丙酮定容至200 mL。取50 mL倒入分液漏斗，加飽和氯化鈉溶液10 mL及石油醚50 mL，混勻。再以二氯甲烷50 mL萃取兩次，收集二氯甲烷層，以適量無水硫酸鈉脫水。過濾後濾液於40°C減壓濃縮至無溶劑，殘留物以正己烷10 mL溶解，供淨化用。

#### 2. 淨化：

取供淨化用之溶液注入預先以正己烷10 mL潤濕過之矽酸鎂固相萃取匣，再以正己烷：二氯甲烷(9:1, v/v)溶液10 mL沖提萃取匣，沖提液全部收集至試管中，用氮氣吹乾後，以正己烷溶解並定容至1 mL，供作檢液，以GC/ECD偵測之。若有農藥檢

出時，再以GC/MS確認之。

#### (四)氣相層析分析條件

##### 1. 氣相層析儀電子捕獲偵測器(GC/ECD)

(1)層析管：DB-608毛細管柱，內徑0.53 mm × 30 m，內膜厚度1.5 μm。

(2)偵測器：ECD-Ni<sup>63</sup>

(3)分析溫度：

a. 注射器：250°C

b. 偵測器：300°C

c. 層析管溫度：起始溫度160°C，持續6 min後，以10°C/min升溫速率至280°C，持續7.5 min。

(4)注射體積：1 μL。

(5)載行體積：氬氣，15 mL/min。

##### 2. 氣相層析質譜儀(GC/MS)

(1)層析管：DB-5MS，內徑0.25 mm × 30 m，內膜厚度0.5 μm。

(2)分析溫度：

a. 注射器：250°C。

b. 偵測器介面溫度：300°C。

c. 層析管溫度：起始溫度70°C，持續2 min後，以25°C/min升溫速率至130°C，再以2°C/min升溫速率至140°C，最後以25°C/min升溫速率至300°C，持續10.2 min。

(3)注射體積：3 μL。

(4)載行體積：氬氣，0.9 mL/min。

#### (五)定性與定量

##### 1. 定性：

檢體以GC/ECD檢出疑似農藥時，再利用GC/MS進行分析，就檢液與標準溶液所得波峰之滯留時間、質譜圖及相對離子強度<sup>(22)</sup>鑑別之。

相對離子強度 (% of base peak)	EI-GC-MS之容許範圍
> 50%	± 10%
> 20% to 50%	± 15%
> 10% to 20%	± 20%
≤ 10%	± 50%

##### 2. 定量：

(1)當待測物定性確認後，以GC/ECD之標準曲線定量。

(2)所得之濃度若超過標準曲線之線性範圍，則以正己烷適當稀釋，使其濃度落於線性範圍內。

(3)依下式計算樣品之濃度：

$$\text{檢體之有機氯劑農藥殘留量(ppm)} = C \times F \times V/W$$

C：由標準曲線求得檢液中各有機氯劑之濃度(μg/mL)

F：稀釋倍數

V：檢體最後定容體積(mL)

W：取樣分析檢體之重量(g)

(3)樣品之農藥殘留量再依檢體乾燥減重百分率換算成乾品之農藥含量。

#### (六)品質管制<sup>(23)</sup>

1. 每品目20件檢體進行檢測時，均進行查核樣品、空白樣品、空白添加回收、檢體添加回收及重複分析等。

2. 查核樣品：查核樣品之濃度、管制上(下)限及警告上(下)限值如下表。查核樣品以標準曲線求得濃度，其濃度須在管制上下值內。

有機氯劑農藥	查核樣品濃度	管制上限	管制下限	警告上限	警告下限
	單位：μg/mL				
Aldrin	0.040	0.045	0.034	0.043	0.036
α-BHC	0.040	0.045	0.036	0.044	0.038
β-BHC	0.100	0.110	0.088	0.107	0.092
γ-BHC	0.040	0.046	0.036	0.044	0.037
δ-BHC	0.040	0.045	0.035	0.043	0.037
cis-Chlordane	0.040	0.045	0.034	0.043	0.036
trans-Chlordane	0.040	0.045	0.034	0.044	0.036
Oxychlordane	0.040	0.046	0.033	0.044	0.035
p,p'-DDE	0.040	0.045	0.036	0.044	0.037
p,p'-TDE	0.040	0.045	0.036	0.044	0.038
o,p'-DDT	0.100	0.121	0.084	0.114	0.090
p,p'-DDT	0.080	0.095	0.068	0.090	0.073

有機氯劑農藥	查核樣品濃度	管制上限	管制下限	警告上限	警告下限
	單位：µg/mL				
Dicofol	0.200	0.242	0.147	0.226	0.163
Dieldrin	0.040	0.045	0.034	0.043	0.036
Endosulfan isomers	0.040	0.045	0.034	0.043	0.036
Endosulfan sulfate	0.100	0.125	0.072	0.116	0.081
Endrin	0.040	0.047	0.035	0.045	0.037
Heptachlor	0.040	0.046	0.035	0.044	0.037
Heptachlor epoxide	0.040	0.044	0.034	0.043	0.036
Hexachloro-benzene	0.040	0.046	0.035	0.045	0.037
Quintozene	0.040	0.047	0.034	0.045	0.037
Pentachloro-aniline	0.040	0.045	0.035	0.043	0.037
Methyl pentachloro-phenyl sulphide	0.040	0.044	0.036	0.043	0.037

- 空白樣品：以水當作空白樣品，依二、(三)節方法萃取。空白樣品不得檢出農藥，以確保分析流程無污染。
- 空白添加回收：以水當空白樣品，添加 aldrin、 $\alpha$ -BHC、p,p'-DDD及heptachlor標準品溶液(0.8 µg/mL) 1 mL，依二、(三)節方法萃取。分析後以標準曲線求得濃度，各農藥之相對誤差須在下表之管制上下值內。

有機氯劑農藥	管制上限	管制下限	警告上限	警告下限
	%			
Aldrin	108	79	103	84
$\alpha$ -BHC	114	72	107	79
p,p'-DDD	125	85	118	91
Heptachlor	117	85	112	90

- 檢體添加回收：各品目藥材分別添加 aldrin、 $\alpha$ -BHC、p,p'-DDD及heptachlor農藥標準品溶液(0.8 µg/mL) 1 mL，依二、(三)節方法萃取。其添加回收率須在60~140%。
- 重複分析：每品目之20件檢體中，取其中1

件檢體分成3份，重新編號後當做該品目之重複分析試驗。其檢驗結果之相對標準偏差值(CV)<sup>(24)</sup>應落在下表之範圍內，否則不符合本局監管之規定，該品目所有檢體應重新檢驗。

檢出量(ppm)	CV容許值(%)
1	± 10
0.1	± 20
0.01	± 50

## 結果與討論

### 一、藥材品項評選與價購

本計畫中藥材之選擇係依據各國已訂限量標準者、中華中藥典(台灣傳統藥典)已收載、市場使用量及藥食同源等風險評估因子加權計分，取最高分之藥材優先列入年度調查之品目。自93~97年已完成桂皮等84種中藥材之檢驗<sup>(16-20)</sup>，98年度檢測附子、青皮、苦參、菝葜、黃耆、款冬花、豬苓、栝樓根、天麻、高良薑、獨活、升麻、川貝母及紅參14種中藥材，各20件，共280件檢體。上述檢體除紅參20件外，其餘檢體82%購自中藥廠，係因中藥廠之中藥材使用量大，且直接關係到中藥製劑之品質，故以中藥廠之藥材優先。若每品目不足20件者，則至中藥房購買補足。至於紅參藥材，曾於93年進行檢驗，當年不合格率75%，檢體來源主要為中藥廠(85%)。因離前次調查已5年，其農藥殘留情形恐有改變，且自95年公告人參農藥殘留限量後，GMP中藥廠均需依規定檢驗紅參藥材之農藥殘留，該項並列入後續查廠之查核重點之一。至於中藥房或其他零售業者，少有能自行檢驗控管品質，卻普遍為民眾購買紅參來源，故今年度紅參藥材改向藥材進口商或中盤商購買，以瞭解現今市面紅參農藥殘留情形。

### 二、乾燥減重試驗結果

各國之中藥材有機氯劑殘留限量並未明定需以乾品計，然由於藥材自身特性、儲存情況迥異，造成各藥材間含水量之差異，為避免因含

水量多寡而影響結果含量，故本實驗檢測之結果均換算成藥材乾品之含量。各檢體有含少量或亦有不合揮發性成分者，惟本實驗皆以乾燥減重百分率當作藥材之含水量。本次實驗之14種中藥材之乾燥減重結果，其平均百分率介於5.97~14.80%。

### 三、檢驗結果之品質管制

為確保委外實驗室之檢驗品質，除每批次之品質管制外，另於委託檢驗期間執行一次盲樣試驗，以確保檢驗結果之準確度。並配合實驗室之實地查核，以確保符合品保要求。

本實驗各有機氯農藥對照標準品以各個不同

濃度分析，各標準曲線之相關係數( $r^2$ )均大於0.995(表二)，顯示具良好之線性關係。各種農藥之偵測極限如表二，與各國有機氯劑農藥殘留限量(表一)比較，遠低於限量值，符合本實驗之要求。

為確保檢驗數據之準確性，每品目進行檢測時，均同時進行空白樣品、查核樣品、空白添加回收、檢體添加回收及重複分析。本實驗之空白樣品皆未檢出農藥；各查核樣品與空白添加回收試驗之測試值均落於警告上值與警告下值間。檢體添加回收率會因藥材基質與農藥種類而有不同，其回收率範圍為62.64~131.18%。重複分析之檢體為隨機取樣，14種藥材中，僅青皮、款冬花及紅參藥材之重複分析檢體檢出有機氯

表二、11種有機氯劑農藥對照標準品之標準曲線相關係數( $r^2$ )及方法偵測極限

農藥名稱		$r^2$	方法偵測極限(ppb)
Aldrin		0.9980~1.0000	2.00
BHC	$\alpha$ -BHC	0.9982~0.9999	2.00
	$\beta$ -BHC	0.9983~0.9997	8.37
	$\gamma$ -BHC	0.9990~1.0000	2.21
	$\delta$ -BHC	0.9982~0.9999	2.00
Chlordane	<i>cis</i> -Chlordane	0.9972~0.9999	2.00
	<i>trans</i> -Chlordane	0.9983~0.9998	3.37
	Oxychlordane	0.9900~0.9998	2.00
DDT	<i>p,p'</i> -DDE	0.9986~1.0000	2.24
	<i>p,p'</i> -TDE	0.9980~0.9999	2.00
	<i>o,p'</i> -DDT	0.9969~0.9999	5.00
	<i>p,p'</i> -DDT	0.9953~0.9996	4.00
Dicofol		0.9877~0.9977	9.70
Dieldrin		0.9984~1.0000	3.02
Endosulfan	Endosulfan isomers I	0.9985~0.9999	2.00
	Endosulfan isomers II	0.9984~1.0000	2.31
	Endosulfan sulfate	0.9980~0.9999	5.46
Endrin		0.9995~0.99998	2.02
Heptachlor	Heptachlor	0.9983~0.9999	2.00
	Heptachlor epoxide	0.9975~1.0000	2.00
Hexachlorobenzene		0.9992~0.9999	2.00
Quintozene (PCNB)	Quintozene (PCNB)	0.9993~1.0000	2.00
	Pentachloro-aniline	0.9992~0.9999	3.59
	Methyl pentachloro-phenyl sulphide	0.9987~0.9999	3.18

劑農藥殘留。三重覆分析結果，青皮檢出dicofol 5.283 ppm，CV值為4.37% (該濃度之CV容許值為10%)；款冬花檢出hexachlorobenzene 0.005 ppm，CV值為17.16% (該濃度之CV容許值為50%)；紅參檢出quintozene 10.121 ppm、pentachloroaniline 4.393 ppm及hexachlorobenzene 1.162 ppm，其CV值分別為5.89、6.24、6.13% (該等濃度之CV容許值均為10%)，另尚檢出methyl pentachlorophenyl sulphide 0.841 ppm，其CV值為8.99% (該濃度之CV容許值為20%)。上述結果顯示執行單位之實驗室品質管制符合品管要求。

除上述之品質管制外，於委託檢驗期間，購買混合標準品溶液進行一次盲樣試驗；並配合實驗室之實地查核，以確保符合品保要求。盲樣試驗檢體乃購自NIST (National Institute of Standards and Technology)之參考標準物質(standard reference material, SRM)，內含溶於正己烷之 $\alpha$ -BHC、 $\beta$ -BHC、oxychlordan、trans-chlordane、endosulfan-I、endrin、endosulfan-II、endosulfan sulfate。執行單位之測試結果與SRM標示量相比，其檢出量為標示量之99~107%，顯示執行單位之分析具良好之準確度。另實驗室實地查核依數據品質、人員組織、樣品管制作業、儀器設備校正程序、檢測數據驗算、報告程序及品質管制程序等項目進行查核，結果顯示執行單位均符合品保品管要求。

#### 四、中藥材中有機氯劑農藥殘留量檢測結果

附子等14種中藥材各20件共計280件檢體中，紅參20件、青皮17件、栝樓根2件、豬苓、黃耆及款冬花各1件檢出有機氯劑農藥殘留(表三)，附子、苦參、莪朮、天麻、高良薑、獨活、升麻及川貝母則均未檢出其殘留。

依我國之中藥材限量標準，98年度檢測之附子等14種中藥材中，僅紅參及黃耆具限量標準(BHC總量 $< 0.9$  ppm，DDT總量 $< 1.0$  ppm，PCNB $< 1.0$  ppm)。紅參20件檢體均檢出PCNB (0.047~16.610 ppm)，18件檢出hexachlorobenzene (0.004~1.224 ppm)。若以限量標準來看，6件之PCNB不合格，不合格率為30%。另20件黃耆中，1件檢出DDT類0.016 ppm，20件檢體均與規定相符。其餘青皮等12種中藥材尚未訂定規範，其中青皮17件檢出dicofol 0.083~5.789 ppm，值得注意。

依各國之中藥材限量標準，亦只有紅參與黃耆具限量標準，以香港、美國及歐盟限量標準來看，紅參20件檢體，6件PCNB大於1 ppm，5件hexachlorobenzene大於0.1 ppm，共計6件超出限量標準。另黃耆20件均符合標準。以日本之中藥標準來看，因只規範BHC與DDT，故黃耆與人參均符合其限量標準。

綜合上述結果，本次檢測之14種中藥材280件檢體，以我國有機氯劑農藥殘留限量標準來看，除紅參6件檢體超出限量標準外，其餘檢體均符合標準。

若以檢出率(表三)比較，紅參檢出率最高，PCNB類檢出率100%，hexachlorobenzene檢出

表三、藥材檢出之農藥項目、檢出件數、檢出率及檢出範圍

中藥材	檢出農藥項目	檢出件數	檢出率(%)	檢出範圍(ppm)
紅參	Hexachlorobenzene	18	90	0.004~1.224
	PCNB	20	100	0.047~16.610
青皮	Dicofol	17	85	0.083~5.789
栝樓根	DDT	2	10	0.007、0.007
豬苓	Chlordane	1	5	0.067
黃耆	DDT	1	5	0.016
款冬花	Hexachlorobenzene	1	5	0.006

率90%。其次為青皮，檢出率85%，主要檢出dicofol；栝樓根檢出率10%，主要檢出DDT類農藥，其餘中藥材中有機氯劑農藥殘留之檢出率與項目詳見表三。11種有機氯劑農藥中，PCNB檢出率最高，aldrin、BHC、dieldrin、endosulfan、endrin與heptachlor則均未檢出。

本計畫除紅參20件外，其餘260件檢體來自25家中藥廠及20家中藥房，依據中藥廠及中藥房提供之產地資料進行分析，本計畫所購之藥材，同種藥材間來源有2-3個產地，然產地與藥材之有機氯劑農藥殘留並無直接相關。本次檢出率較高之青皮，來自中國大陸福建、江西、廣西或雲南，另紅參藥材均來自吉林省。

### 結 論

本計畫之附子等14種中藥材各20件，共計280件檢體檢測結果，紅參20件、青皮17件、栝樓根2件、豬苓、黃耆及款冬花各1件檢出有機氯劑農藥殘留，附子、苦參、莪朮、天麻、高良薑、獨活、升麻與川貝母則均未檢出。紅參6件超出我國限量標準，將持續進行監測，另青皮17件檢出dicofol，值得注意。本計畫結果提供制定管制標準參考。

### 參考文獻

- Huxtable, R. J. 1990. The harmful potential of herbal and other plant products. *Drug Safety* 5 Suppl. 1: 126-136.
- Drew, A. K. and Myers, S. P. 1997. Safety issues in herbal medicine: implications for the health professions. *The Medical Journal of Australia* 166(19): 538-541.
- Chan, Y. K. and Critchley, J. A. 1996. Usage and adverse effects of Chinese herbal medicines. *Human and Experimental Toxicology* 15: 5-12.
- Ling, Y. C., Teng, H. C. and Cartwright, C. 1999. Supercritical fluid extraction and clean-up of organochlorine pesticides in Chinese herbal medicine. *Journal of Chromatography A* 835(1-2): 145-157.
- Leung, K. S., Chan, K., Chan, C. L. and Lu, G. H. 2005. Systematic evaluation of organochlorine pesticide residues in Chinese materia medica. *Phytotherapy Research* 19(6): 514-518.
- Huang, H. 2001. Determination of residues of organic chloride pesticide in Chinese medicinal materials with capillary gas chromatography. *Zhong Yao Cai* 24(4): 239-241.
- Chen, J. M., Zhang, S. M. and Liu, H. L. 2000. Study on the determination of organochlorine pesticide residue and its maximum residue limits in traditional Chinese medicines. *Chinese Pharmaceutical Journal* 35(2): 79-82.
- Han, G., Chen, T. and Dai, J. 1996. Quantitative analysis of organochlorine pesticide residues in Chinese drugs. *Zhongguo Zhong Yao Za Zhi* 21(10): 591-594.
- 行政院衛生署。2006。中藥藥材污穢物質限量。95.11.10署授藥字第0950003346號公告。
- 行政院衛生署。2009。地龍等中藥藥材含污穢物質之限量。98.07.22.署授藥字第0980001932號公告。
- The Society of Japanese Pharmacopoeia. 2006. *Crude Drugs. The Pharmacopoeia of Japan Fifteenth Edition.* 廣川書店，東京。
- 國家藥典委員會。2005。藥材及飲片。中華人民共和國藥典。化學工廠出版社，北京。
- Department of Health Hong Kong Special Administrative Region. 2005. *Hong Kong Chinese Materia Medica Standard volume 1.* Hong Kong.
- United States Pharmacopoeia Convention, Inc. 2004. *The United States Pharmacopoeia Twenty-seventh Revision, The National Formulary Twenty-second Edition.* Rockville, MD, U.S.A.
- The Council of Europe. 2005. *European Pharmacopoeia of Fifth Edition volume 1,* p.219. France.
- 賴齡、劉芳淑、徐雅慧、游佼玲、蕭碩宏、羅吉方、林哲輝。2006。中藥材中有機氯劑農藥殘留檢驗(I)。藥物食品檢驗局調查研究年報，

- 24: 257-264。
17. 賴齡、秦玲、陳儀驊、羅吉方、林哲輝。2006。中藥材及含人參製劑中有機氯劑農藥殘留檢驗(II)。藥物食品檢驗局調查研究年報，24: 265-273。
18. 徐雅慧、陳儀驊、羅吉方、林哲輝。2007。中藥材中有機氯劑農藥殘留檢驗。藥物食品檢驗局調查研究年報，25: 119-126。
19. 徐雅慧、陳儀驊、劉芳淑、羅吉方、林哲輝。2008。中藥材中有機氯劑農藥殘留檢驗(IV)。藥物食品檢驗局調查研究年報，26: 102-111。
20. 徐雅慧、陳儀驊、劉芳淑、羅吉方、林哲輝。2009。中藥材中有機氯劑農藥殘留檢驗(V)。
- 藥物食品檢驗局調查研究年報，27: 42-50。
21. 行政院衛生署中華藥典中藥集編修小組。2004。乾燥減重測定法。中華中藥典第一版。行政院衛生署，台北。
22. Method validation and quality control procedures for pesticide residues analysis in food and feed (Document NO. SANCO/10684/2009)
23. 行政院環境保護署環境檢驗所。2004。環境檢驗室品質管制圖建立指引(NIEA-PA105)。93.10.04環署檢字第0930072069E號公告。
24. Gunther, F. A. 1980. Interpreting pesticide residue data at the analytical level. Res. Rev. 76: 155-170.

# Survey on Organochlorine Pesticide Residues in Raw Materials of Traditional Chinese Medicine (VI)

YA-HUI HSU, YI-HUA CHEN, FANG-SU LIU, YI-CHU LIU, CHI-FANG LO  
AND JER-HUEI LIN

Division of Research and Analysis

## ABSTRACT

The evaluation of organochlorine pesticides in raw materials of traditional Chinese medicine (TCM) is essential to the quality control of TCM. In this study, the contents of organochlorine pesticides in 14 raw materials of TCM as follows, *Aconiti Lateralis Praeparata Radix*, *Citri Reticulatae Pericarpium Viride*, *Sophorae Flavescentis Radix*, *Curcumae Rhizoma*, *Astragali Radix*, *Farfarae Flos*, *Polyporus*, *Trichosanthis Radix*, *Gastrodiae Rhizoma*, *Alpiniae Officinari Rhizoma*, *Angelicae Pubescentis Radix*, *Cimicifugae Rhizoma*, *Fritillariae Cirrhosae Bulbus* and Red Ginseng were investigated. For each raw material of TCM, the residues of 11 organochlorine pesticides, such as aldrin, BHC, chlordane, DDT, dicofol, dieldrin, endosulfan, endrin, heptachlor, hexachlorobenzene, and quintozene, were analyzed by GC/ECD and confirmed by GC/MS. Twenty samples per raw material of TCM were tested. The result showed that all 20 samples of Red Ginseng were found to contain PCNB of 0.047~16.610 ppm and 18 samples contained hexachlorobenzene of 0.004~1.224 ppm. Among 20 samples of Red Ginseng, 6 samples were over limit of PCNB. Besides, 17 samples of *Citri Reticulatae Pericarpium Viride* contained dicofol of 0.083~5.789 ppm, 2 samples of *Trichosanthis Radix* contained DDT of 0.007 ppm, one sample of *Polyporus* contained chlordane of 0.067 ppm, one sample of *Astragali Radix* contained DDT of 0.016 ppm and one sample of *Farfarae Flos* contained hexachlorobenzene of 0.006 ppm. The results of this survey can serve as the references for the regulatory authority.

**Key words:** traditional Chinese medicine, organochlorine pesticide, aldrin, BHC, chlordane, DDT, dicofol, dieldrin, endosulfan, endrin, heptachlor, hexachlorobenzene, quintozene