

覃东立, 姜海峰, 黄晓丽, 等. 东北稻蟹中18种微量元素含量及健康风险评价[J]. 农业资源与环境学报, 2019, 36(2): 245-252.

QIN Dong-li, JIANG Hai-feng, HUANG Xiao-li, et al. The levels of 18 trace elements and health risk assessment in rice-crab (*Eriocheir sinensis*) from northeast China[J]. *Journal of Agricultural Resources and Environment*, 2019, 36(2): 245-252.

东北稻蟹中18种微量元素含量及健康风险评价

覃东立^{1,2}, 姜海峰¹, 黄晓丽¹, 高磊¹, 王鹏¹, 刘欢², 韩刚²

(1. 中国水产科学研究院黑龙江水产研究所, 哈尔滨 150070; 2. 农业部水产品质量安全控制重点实验室, 北京 100141)

摘要:为探讨东北地区(黑龙江省、吉林省和辽宁省)稻田养殖河蟹的微量元素含量水平和食用安全性,于2017年9月在东北主要养殖区采集稻田养殖河蟹56份,利用电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)检测了河蟹体内18种微量元素的含量,并采用单因子污染指数(P_i)和每周可耐受摄入量(PTWI)、目标危害商值(THQ)法分别评价了其污染程度和食用安全性。结果表明:河蟹中检出的大多数微量元素含量远高于该地区池塘养殖的淡水鱼类;吉林省河蟹体内的Cr、Cd、U等10种微量元素含量与其他两省份相比存在显著性差异($P<0.05$);所有样品的Cu、Pb、Cd和Cr含量均未超出国家食品安全标准;5种重金属(Cu、Zn、Pb、Cd和Cr)的成人每周实际摄入量(AWI)低于食品添加剂联合专家委员会(JECFA)推荐的每周可耐受摄入量;5种重金属和其他4种有害微量元素(Ba、U、Ag和Be)的人体每日摄入量(EDI)低于美国环保署(USEPA)推荐的参考剂量(RfD)。研究表明食用东北稻田养殖河蟹摄入的微量元素对食用人群没有明显的健康风险。在检测的18种微量元素中,Ba、Pb和Cd对复合污染物风险指数(HI)贡献率较高,是主要的风险元素。

关键词:河蟹;微量元素;稻田养殖;食用安全;东北

中图分类号:S93

文献标志码:A

文章编号:2095-6819(2019)02-0245-08

doi: 10.13254/j.jare.2018.0119

The levels of 18 trace elements and health risk assessment in rice-crab(*Eriocheir sinensis*) from northeast China

QIN Dong-li^{1,2}, JIANG Hai-feng¹, HUANG Xiao-li¹, GAO Lei¹, WANG Peng¹, LIU Huan², HAN Gang²

(1. Heilongjiang River Fishery Research Institute, Chinese Academy of Fishery Sciences, Harbin 150070; 2. Key Laboratory of Control of Quality and Safety for Aquatic Products, Ministry of Agriculture, Beijing 100141)

Abstract: In order to investigate the concentrations and food safety of 18 trace elements in rice-crab (*Eriocheir sinensis*) from northeastern China (including Heilongjiang, Jilin and Liaoning Provinces), a total of 56 crab samples were collected from main rice-crab aquaculture area in September 2017. The concentrations of 18 trace elements were detected by inductively coupled plasma-mass spectrometry (ICP-MS), and the pollution levels and potential health risks were estimated by single-factor pollution index (P_i), provisional tolerated weekly intake (PTWI) and target hazard quotient (THQ), respectively. Results showed that contents of most trace element in crab were much more higher than in freshwater fish obtained from pond. Significant differences in ten trace element including Cr, Cd and U were found in samples between Jilin Province and the other two regions ($P<0.05$). The contents of Cu, Pb, Cd and Cr in all the samples were not exceeded national standards. The adult weekly intake (AWI) of analyzed five heavy elements (including Cu, Zn, Pb, Cd and Cr) were lower than PTWI recommended by JECFA. The estimated daily intake (EDI) of the five heavy elements and four toxic trace elements (including Ba, U, Ag and Be) were lower than the reference dose (RfD) recommended by USEPA. All results indicated that trace elements intake from the rice crab had no significant health risk to the health risks. The trace elements of Ba, Pb and Cd were the main risk elements, which had high contribution rate to HI.

Keywords: river crab; trace element; rice paddy culture; food safety; northeast China

收稿日期:2018-05-12 录用日期:2018-08-01

作者简介:覃东立(1974—),男,湖北长阳人,副研究员,从事渔业环境及水产品质量安全研究。E-mail: qdl978@163.com

基金项目:中国水产科学研究院基本科研业务费项目(2018HY-ZD0604);国家公益性行业(农业)科研专项(201503108)

Project supported: Central Public-interest Scientific Institution Basal Research Fund, CAFS (2018HY-ZD0604); The Special Scientific Research Fund of Agricultural Public Welfare Profession of China (201503108)

稻-渔系统是通过有效利用水土资源同时产出稻谷和水产品的重要农业方式,对保障区域食物供给和保护当地资源和环境有重要作用。近年来,我国的稻渔综合种养模式发展十分迅速,稻田养殖面积从1983年的44 100 hm^2 增加到2016年的1 520 000 hm^2 ,养殖产量从33 600 t增加到1 630 000 t,目前国内有超过25个省(市、区)进行了稻渔种养模式的推广^[1]。东北地区稻田养殖面积130 000 hm^2 ,稻田养蟹共生模式是本地区最主要的种养模式,其中辽宁省盘锦市是我国北方最大的河蟹养殖基地,2015年稻田养蟹面积达52 533 hm^2 ^[2]。随着稻田养殖河蟹产量的增加,其食用安全性逐渐引起了人们的关注,但目前该地区尚缺乏此类研究。微量元素含量是评价食品食用安全的一项重要指标^[3-5]。一部分微量元素如Cu、Fe、Zn、Cr、Co、Se等被确认与人体健康密切相关,是人体必需的微量元素;一部分微量元素如Pb和Cd等对人体无益,且具有极强的毒性,不是人体必需的微量元素^[6]。当食品中必需的微量元素超过一定限量时,也会给消费者健康带来不良影响^[7-8]。为了全面掌握本地区稻田养殖河蟹的微量元素含量水平和食用安全性,本研究采用电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)检测了东北三省主要稻田养殖河蟹产区生产的成品河蟹体内18种微量元素的含量水平,并采

用每周可耐受摄入量(PTWI)和目标危害商值(THQ)法分别评价了食用安全性和健康风险。

1 材料与方法

1.1 仪器与试剂

电感耦合等离子体-质谱仪7500cx(美国Agilent公司),配置八级杆碰撞/反应池系统(ORS);微波消解仪MARSX(美国CEM公司);纯水器(美国Millipore公司)。

硝酸、盐酸均为优级纯,购自德国Merck公司;100 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的Li、Sc、Ge、Rh、In、Tb、Lu、Bi内标溶液和10 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的Li、Y、Ce、Tl、Co调谐液,购自美国Agilent公司;标准品Be、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Se、Mo、Ag、Cd、Sb、Ba、Ti、Pb和U标准溶液(1000 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$),购自国家标准物质中心;超纯水电阻率 $\geq 18.2 \text{ M}\Omega\cdot\text{cm}^{-1}$;氩气、氮气纯度 $\geq 99.999\%$ 。

1.2 样品采集与制备

稻田养殖河蟹(中华绒螯蟹, *Eriocheir sinensis*)样品于2017年9月采自辽宁省盘锦市,吉林省长春市、吉林市、四平市,黑龙江省绥化市、虎林市、佳木斯市(如图1)。共计样品56份,其中黑龙江省12份,吉林省20份,辽宁省24份。每份样品采集1~2 kg,样品个体平均体重:雌蟹65~130 g,雄蟹85~155 g。

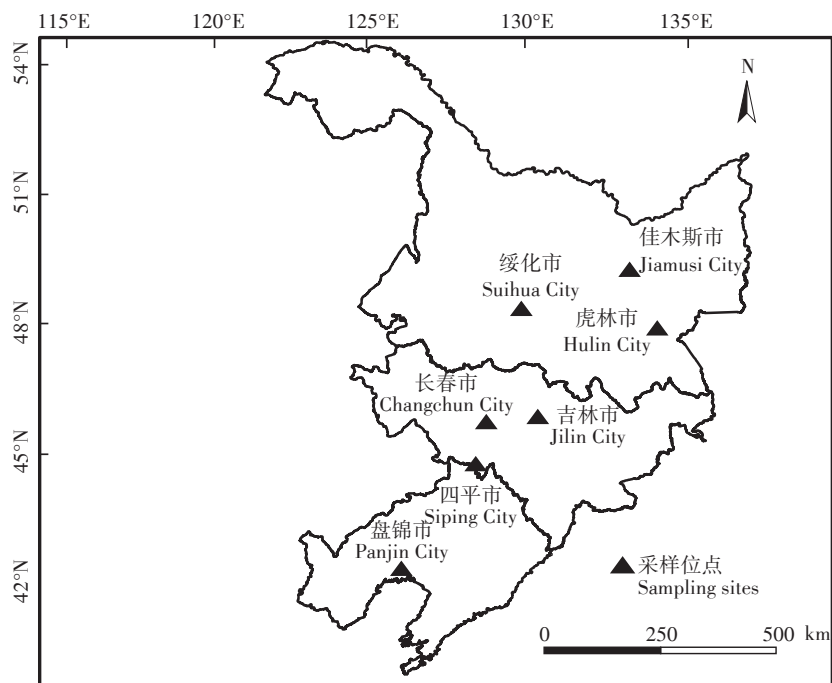


图1 样品采集点位置

Figure 1 Map of sampling sites

将采集的河蟹放入有冰块的保温箱中带回实验室。活体解剖前,将河蟹体表水分用吸水纸擦干,用电子称测定质量,去壳,取河蟹肌肉、蟹黄等可食部分,混合均质,-20℃贮存,备测。

1.3 样品检测

测定方法参照文献[9]。分析用的玻璃器皿在使用前用浓硝酸浸泡过夜,超纯水冲洗三遍,烘干备用。样品使用微波消解:用分析天平准确称取0.5 g样品,加入质量浓度为65%的硝酸2.5 mL,37%的盐酸0.5 mL,超纯水7.0 mL。微波消解程序为:微波功率1600 W(50%),爬升温度185℃,升温时间10.5 min,保持时间14.5 min。消解完成后,将消解液移入50 mL容量瓶中,加入内标溶液($100 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$) 0.5 mL,定容至50 mL。同时做样品空白溶液。消解后的样品和试剂空白均用ICP-MS检测。每次测定之前先绘制标准曲线(标准溶液Be、V、Cr、Co、Ni、Se、Mo、Ag、Cd、Sb、Ti、Pb和U: $0 \sim 20 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$; Fe、Mn、Ba、Cu和Zn: $0 \sim 1000 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$),当拟合度达到99.9%以上时进行测试。在样品分析过程中随机抽取5%~10%的样品进行6次重复测试以验证试验的重复性。标准物质验证方法参照文献[9]。

1.4 污染评价与膳食评估

1.4.1 污染指数法评价

部分微量元素被纳入重金属范畴,我国食品安全相关标准已制定了其在水产品中的限量,本研究采用单因子污染指数法^[10-11]评价河蟹受重金属污染状况,公式如下:

$$P_i = C_i / C_{si} \quad (1)$$

式中: P_i 为河蟹中第*i*种重金属的污染指数; C_i 为河蟹中第*i*种重金属的含量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; C_{si} 为第*i*种重金属污染物的标准限量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。本研究采用NY 5073—2006《无公害食品 水产品中有毒有害物质限量》^[12]和GB 2762—2017《食品安全国家标准 食品中污染物限量》^[13]中重金属限量标准为参考值。污染指数 $P_i < 0.2$ 为正常背景值水平; $P_i = 0.2 \sim 0.6$ 为轻污染水平; $P_i = 0.6 \sim 1.0$ 为中污染水平; $P_i > 1.0$ 为重污染水平^[11,14]。

1.4.2 人体耐受量评估

以世界卫生组织(WHO)、联合国粮农组织(FAO)下的食品添加剂联合专家委员会(JECFA)制定的污染物的单位体重每周可耐受摄入量^[15]作为食用安全性评价依据:Zn、Cu、Pb、Cd、Cr的单位体重每周可耐受摄入量分别为7、3.5、0.025、0.007、0.023 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。本研究选取部分微量元素,依据其在河蟹

中的含量以及我国居民每周水产品消费量,计算成人每周实际摄入量(AWI,mg),并与成人每周可耐受摄入量(PTWI,mg)比较,评价其食用安全性。评价方法如下:

$$AWI = C_i \times WC \quad (2)$$

$$PTWI = \text{单位体重每周可耐受摄入量} \times \text{成人体重} \quad (3)$$

式中: C_i 为河蟹中某种微量元素含量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,取平均值和最高值分别计算每周摄入某种微量元素的平均值和最高值;WC为人均每周水产品消费量,根据2015年中国居民营养与慢性病状况报告^[16],按0.168 $\text{kg} \cdot \text{周}^{-1}$ 计。成人体重以60 kg计。

以AWI占PTWI的百分比对食用安全性进行评价,所占比例越高,其食用安全性越低。

1.4.3 非致癌健康风险评估

采用USEPA提出的目标危害商值(THQ)评估河蟹体内单一微量元素对人体健康所产生的风险^[6,17-18],其计算公式如下:

$$EDI = [IR \times C / BW_a] \times 10^{-3} \quad (4)$$

$$THQ = EDI / RfD \quad (5)$$

式中:EDI为人体微量元素的每日摄入量, $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$;IR为水产品的人均日摄入量($\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$,湿质量),根据2015年中国居民营养与慢性病状况报告^[16],本研究取23.7 $\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$;C为水产品中微量元素含量, $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,本研究取平均值和最大值分别计算; BW_a 为成人平均体重,按60 kg计算; RfD 为参考剂量, $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 。若 $THQ < 1$,则无显著健康风险;若 $THQ > 1$,摄入人群有明显健康风险。 THQ 值越大,相应的风险越大。

风险指数(HI)用于评价复合污染物的健康风险^[6,19],公式如下:

$$HI = \sum_{i=1}^n THQ_i \quad (6)$$

式中: THQ_i 为微量元素*i*的目标危害商值。

1.5 数据处理

采用Excel 2010统计软件进行数据初步分析,数据结果用平均值±标准差(Mean±SD)表示;利用SPSS Statistics 18.0软件对数据进行统计学分析。

2 结果与讨论

2.1 稻田养殖河蟹体内微量元素含量水平

检测了东北三省稻田养殖河蟹体内18种微量元素,其中10种人体必需的微量元素含量水平见表1,8种对人体有害的微量元素含量水平见表2。18种微量元素中,Ti和Sb均未检出,其他16种微量元素在东

表1 东北三省稻田养殖河蟹体内必需微量元素含量水平($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,湿质量)Table 1 Concentrations of essential trace elements in crabs from the northeast China($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, wet weight)

区域 Sampling locations	项目 Items	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Mo	Zn	Se	Co
黑龙江 Heilongjiang	(Mean±SD, n=12)	0.321±0.051a	0.181±0.035a	61.4±6.3a	152±26a	0.376±0.024b	9.99±0.61a	0.067±0.008b	25.2±2.18a	0.495±0.078a	0.115±0.012a
	范围 Range	0.242~0.375	0.133~0.227	52.1~69.3	112~188	0.337~0.404	9.44~11.00	0.055~0.076	22.5~28.1	0.359~0.569	0.097~0.129
吉林 Jilin	(Mean±SD, n=20)	0.116±0.087b	0.048±0.069b	16.0±14.2b	79±48b	0.869±0.509a	9.32±2.75a	0.092±0.023a	23.1±5.35a	0.575±0.296a	0.129±0.109a
	范围 Range	0.021~0.346	0.011~0.280	3.31~44.3	21~210	0.345~2.420	3.90~13.20	0.057~0.132	14.5~35.4	0.098~1.210	0.028~0.442
辽宁 Liaoning	(Mean±SD, n=24)	0.289±0.038a	0.155±0.027a	53.6±13.0a	135±23a	0.409±0.047b	9.47±0.60a	0.061±0.007b	22.2±1.5a	0.540±0.124a	0.104±0.013a
	范围 Range	0.234~0.335	0.120~0.204	40.3~78.2	111~167	0.338~0.488	8.61~10.30	0.052~0.072	20.8~25.4	0.309~0.609	0.084~0.118
东北三省 The northeast China	(Mean±SD, n=56)	0.212±0.115	0.108±0.079	36.9±24.1	111±49	0.625±0.423	9.50±1.94	0.077±0.022	23.2±4.0	0.548±0.217	0.118±0.076
	范围 Range	0.021~0.375	0.011~0.280	3.31~78.2	21~210	0.337~2.420	3.90~13.20	0.052~0.132	14.5~35.4	0.098~1.210	0.028~0.442
	检出率 Detective rate/%	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100

注:表中同列数据中不同字母表示差异显著($P<0.05$)。下同。

Note: Means in the same column with different letters are significantly different ($P<0.05$). The same below.

表2 东北三省稻田养殖河蟹体内有害微量元素含量水平($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,湿质量)Table 2 Concentrations of toxic trace elements in crabs from the northeast China($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, wet weight)

区域 Sampling locations	项目 Items	Cd	Ba	Pb	U	Ag	Be	Ti	Sb
黑龙江 Heilongjiang	(Mean±SD, n=12)	0.038±0.007b	41.0±7.6a	0.132±0.023a	0.011±0.002b	0.018±0.003a	ND	ND	ND
	范围 Range	0.030~0.046	33.3~50.7	0.096~0.157	0.009~0.014	0.014~0.021	ND	ND	ND
吉林 Jilin	(Mean±SD, n=20)	0.090±0.074a	19.7±17.2b	0.053±0.033b	0.027±0.013a	0.018±0.009a	0.002±0.009	ND	ND
	范围 Range	0.023~0.257	3.9~64.6	0.028~0.155	0.009~0.051	0.008~0.039	ND~0.036	ND	ND
辽宁 Liaolin	(Mean±SD, n=24)	0.037±0.008b	43.8±9.8a	0.131±0.024a	0.011±0.002b	0.016±0.002a	0.005±0.011	ND	ND
	范围 Range	0.027~0.053	25.7~56.9	0.097~0.168	0.009~0.014	0.014~0.020	ND~0.029	ND	ND
东北三省 The northeast China	(Mean±SD, n=56)	0.063±0.058	31.6±17.7	0.093±0.049	0.019±0.012	0.017±0.006	0.003±0.009	ND	ND
	范围 Range	0.023~0.257	3.9~64.6	0.028~0.168	0.009~0.051	0.008~0.039	ND~0.036	ND	ND
	检出率 Detective rate/%	100	100	100	100	100	10.7	0	0

注:ND指未检出。

Note: ND means not detected.

北三省的平均含量从 $0.003\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ (Be)到 $111\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ (Fe),河蟹体内元素含量由高到低排序为 $\text{Fe}>\text{Mn}>\text{Ba}>\text{Zn}>\text{Cu}>\text{Ni}>\text{Se}>\text{V}>\text{Co}>\text{Cr}>\text{Pb}>\text{Mo}>\text{Cd}>\text{U}>\text{Ag}>\text{Be}$ 。东北三省稻田养殖河蟹体内必需的微量元素含量较为丰富,除Ba和Mo外,必需微量元素的含量普遍高于有害微量元素。

与全国其他地方相比,东北三省稻田养殖河蟹体内Pb($0.028\sim0.168\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)、Cd($0.023\sim0.257\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)和Cu($3.90\sim13.2\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)的含量明显低于长三角地区,和庆等^[9]报道长三角地区养殖池塘水产品(包括河蟹)有近一半样点的重金属Cu和Pb分别存在超出 $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $0.5\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 的风险,且所有水产品重金属Cd的含量高于 $0.1\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,76%的样点超出该值约100倍。东北三省稻田养殖河蟹体内Cd和

Cr的平均含量($0.063\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $0.108\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)低于太湖流域($0.287\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $0.474\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[20]。

2.2 稻田养殖河蟹与本区域池塘养殖淡水鱼体内微量元素的含量差异

将东北三省稻田养殖河蟹与本区域池塘养殖的鲤鱼(*Cyprinus carpio*)、鲫鱼(*Carassius auratus*)、草鱼(*Ctenopharyngodon idellus*)^[6]的微量元素含量进行比较,结果见图2(图中纵坐标为河蟹体内微量元素含量与本地区池塘养殖鲤鱼、鲫鱼、草鱼中该微量元素含量的比值)。在检出的16种微量元素中,14种微量元素在河蟹中的含量远高于本地池塘养殖的鲤鱼、鲫鱼、草鱼。其中Mn、Ba、Co在河蟹中的含量是3种淡水鱼体内含量的50倍以上;Cu、Fe、V、Ag在河蟹中的含量与3种淡水鱼体内含量的比值均超过10;Ni、

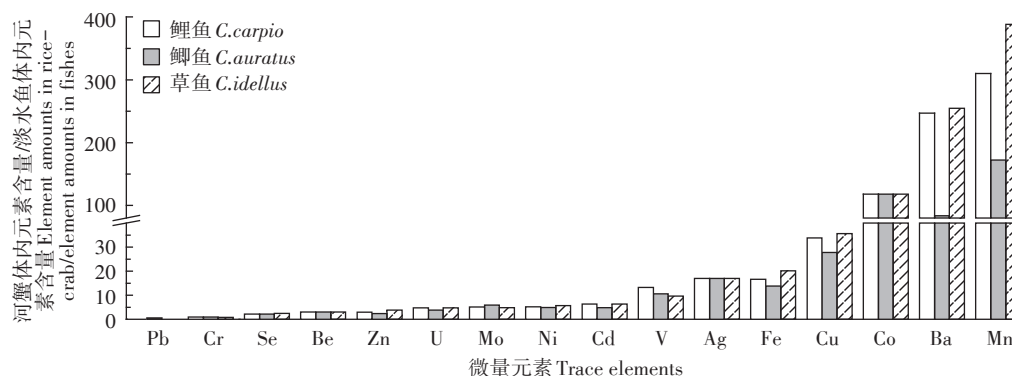


图2 东北三省稻田养殖河蟹与池塘养殖淡水鱼体内微量元素含量比较

Figure 2 Comparison of trace element amount between rice-crab and freshwater fish cultured in northeast China

Mo、Zn、Se、Cd、U、Be在河蟹体内的含量是3种淡水鱼体内含量的2倍以上。导致这一现象的主要原因可能是不同水生生物对微量元素的富集能力具有明显差异,通常认为虾蟹类的栖息水层和食性特点使其对微量元素的富集能力明显高于鱼类^[19,21],另外,由于样品中含有蟹黄,而内脏组织相对于肌肉组织通常也具有更高的微量元素含量^[22]。Cr比值接近1,表明河蟹与本地池塘养殖的淡水鱼体内Cr含量水平相近,可能的原因是河蟹与淡水鱼相比,对Cr的富集能力无明显差异。但Pb的比值为0.4~0.6,说明池塘养殖的淡水鱼Pb含量高于本地稻田养殖河蟹,可能的原因是养殖方式不同,如池塘养殖的淡水鱼饲料投入较多,而饲料中普遍含有一定的Pb^[23],也有可能是河蟹中的Fe、Zn、Se等微量元素含量较高,在一定程度上减少了Pb在河蟹体内的吸收和存留^[24-25]。

2.3 不同省份河蟹体内微量元素的含量差异

由表1、表2可以看出,在检测的18种微量元素中,与黑龙江省、辽宁省相比,吉林省稻田养殖河蟹体内的V、Cr、Mn、Fe、Ni、Mo、Cd、Ba、Pb、U等10种微量元素含量在95%的水平上具有显著性差异($P<0.05$);但黑龙江省和辽宁省相比,其河蟹体内这10种微量元素含量在95%的水平上不具有显著性差异($P>0.05$)。其他8种微量元素在3个省份的河蟹中的含量不具有显著性差异($P>0.05$)。黑龙江省和辽宁省河蟹中V、Cr、Mn、Fe、Ba、Pb等6种微量元素的平均含量高于吉林省,而黑龙江省和辽宁省河蟹中Ni、Mo、Cd、U等4种微量元素的平均含量低于吉林省。

覃东立等^[26]曾报道东北地区养殖池塘的鱼体内Cr含量在不同省份之间存在极显著差异($P<0.01$),黑龙江省和辽宁省明显高于吉林省。本研究中,东北三省稻田养殖河蟹的Cr含量也存在类似的规律。经对

比东北三省的土壤背景值^[27],发现黑龙江省土壤中Cr的平均含量为 $58.6 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,辽宁省土壤中Cr的平均含量为 $57.9 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,两省相差不大,但黑龙江、辽宁两省土壤中Cr的平均含量明显高于吉林省($46.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)。两次研究相互印证,表明黑龙江省、辽宁省与吉林省淡水养殖鱼类和稻田养殖河蟹中Cr含量的差异与本地区土壤中Cr含量的差异相关联。

2.4 污染水平评估

检测的18种微量元素中,有4种微量元素在我国食品安全标准体系中规定了其在水产品中允许的最大含量(限量),其中NY 5073—2006《无公害食品 水产品中有毒有害物质限量》^[12]和GB 2762—2017《食品安全国家标准 食品中污染物限量》^[13]规定所有水产品中Cu的限量为 $50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,甲壳类水产品中Pb和Cd的限量分别为 $0.5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $0.5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,所有水产动物及制品中Cr的限量为 $2.0 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

依据式(1)污染指数评价法,58.9%的样品Cu污染指数 $P_{\text{Cu}}<0.2$,为正常背景值水平,其余样品 P_{Cu} 为0.2~0.3,为轻污染水平;51.8%的样品 $P_{\text{Pb}}<0.2$,为正常背景值水平,其余样品 P_{Pb} 为0.2~0.4,为轻污染水平;87.5%的样品 $P_{\text{Cd}}<0.2$,为正常背景值水平,其余样品 P_{Cd} 为0.2~0.5,为轻污染水平;所有样品 $P_{\text{Cr}}<0.2$,为正常背景值水平。由此可见,评价4种微量元素在本地河蟹中的污染均较轻微或者没有污染。

2.5 人体耐受量评估

从检测的18种微量元素中选取文献^[11,14]报道较多的5种重金属(Cu、Zn、Pb、Cd和Cr)进行人体耐受量评估。依据式(2)和样品中重金属的平均值及最大值,计算出每周实际摄入某种重金属的平均量及最高量,再根据实际摄入量计算其占PTWI的百分比,结果见表3。

表3 河蟹中微量元素成人每周实际摄入量(AWI)及其占成人每周可耐受摄入量(PTWI)比值

Table 3 Crab weekly intakes of trace elements by adults (AWI) and their percentage of provisional tolerable weekly intake (PTWI)

微量元素 Trace elements	PTWI/ mg	河蟹中元素平均含量 Mean contents in crabs/ mg·kg ⁻¹	AWI平均/ mg	AWI平均/PTWI	河蟹中元素最大含量 Maximum contents in crabs/ mg·kg ⁻¹	AWI最大/ mg	AWI最大/PTWI
Zn	420	23.2	3.898	0.93%	35.4	5.947	1.42%
Cu	210	9.50	1.596	0.76%	13.20	2.218	1.06%
Pb	1.5	0.093	0.016	1.07%	0.168	0.028	1.87%
Cd	0.42	0.063	0.011	2.62%	0.257	0.043	10.24%
Cr	1.398	0.108	0.018	1.29%	0.280	0.047	3.36%

以平均值计算,5种重金属的成人每周实际摄入量(AWI_{平均})仅占PTWI的0.76%~2.62%;以最大值计算,5种重金属的AWI_{最大}仅占PTWI的1.06%~10.24%,表明东北地区目前稻田养殖河蟹中因重金属Cu、Zn、Pb、Cd、Cr引起的食用风险低,较为安全。5种重金属中,Cd的食用安全风险最高,今后可重点关注。

2.6 健康风险定量评估

从检测的18种微量元素中选取文献^[6,11,14]报道较多的5种重金属微量元素(Cu、Zn、Pb、Cd和Cr)和4种有害微量元素(Ba、U、Ag和Be)进行健康风险定量评估。通过USEPA官方网站^[28]检索到Cr、Zn、Cd、Ba、U、Ag和Be的参考剂量(RfD);Cu未检索到RfD值,采用文献^[6]的报道值;Pb采用欧洲食品安全管理局(European Food Safety Authority)提供的数据^[29]。依据河蟹中各微量元素的平均值、最大值和式(4)计算人体微量元素的每日摄入量(EDI),依据式(5)计算目标危害商值(THQ),结果见表4。无论是采用平均值还是最大值计算,各元素的THQ均小于1,复合污染物的

风险指数HI在平均摄入水平和最高摄入水平下的值分别为0.24和0.47,也均远小于1,表明所分析的5种重金属和4种有害微量元素摄入不存在明显的健康风险。河蟹体内单一微量元素按THQ排序为Cu>Ba>Zn>Cd>Pb>U>Ag>Be>Cr。进一步分析可知,不同元素对复合污染物的HI的贡献率存在较大差异,Cu、Ba、Zn、Cd和Pb的平均贡献率较高,分别为39.00%、25.95%、12.68%、10.35%和10.19%,总贡献率高达98.17%。Cu和Zn属重金属,同时也是生物体必需的微量元素,只是在过量摄入的情况下会给人体带来危害,鉴于这两种元素计算后的EDI远低于其参考剂量,且THQ<1,因此Cu和Zn不是主要的风险元素。Ba、Cd和Pb不是人体必需的微量元素,对人体有害,且这3种元素对HI的贡献率较高,是检测的18种微量元素中主要的风险元素,尽管其THQ<1,但也可纳入今后的重点监测范畴。

3 结论

(1)东北三省稻田养殖河蟹体内检出的16种微量元素中,人体必需的微量元素含量丰富,除Ba和Mo外,必需微量元素普遍高于有害微量元素;河蟹中Fe、Mn、Ba、Cu、Co、Ag、V、Zn、Ni、Se、Mo、Cd、U和Be等14种微量元素含量水平远高于本地池塘养殖的淡水鱼(鲤鱼、鲫鱼、草鱼)。

(2)检测的18种微量元素中,与黑龙江省、辽宁省相比,吉林省稻田养殖河蟹体内的V、Cr、Mn、Fe、Ni、Mo、Cd、Ba、Pb、U等10种微量元素含量存在显著性差异($P<0.05$);其他8种微量元素含量在3个省份间均不存在显著性差异($P>0.05$)。分析表明河蟹中Cr含量的不同与本地区土壤背景值的差异相关。

(3)单因子污染指数法评价结果表明,大部分样品的Cu、Pb、Cd和Cr含量处于正常背景值水平,少部分样品中Cu、Pb和Cd含量处于轻微污染水平。污染

表4 东北地区稻田养殖河蟹中微量元素含量安全评价

Table 4 Estimated daily intakes(EDI) and target hazard quotient (THQ) of trace elements due to crab consumption

元素 Element	参考剂量 RfD/ μg·kg ⁻¹ ·d ⁻¹	平均值 Average exposure level		最高值 High exposure level	
		EDI		THQ	
		EDI	THQ	EDI	THQ
Cr	1500 ^[28]	0.043	0	0.111	0.000 1
Cu	40 ^[6]	3.753	0.093 8	5.214	0.130 4
Zn	300 ^[28]	9.164	0.030 5	13.980	0.046 6
Cd	1 ^[28]	0.025	0.024 9	0.102	0.101 5
Ba	200 ^[28]	12.480	0.062 4	25.520	0.127 6
Pb	1.5 ^[29]	0.037	0.024 5	0.066	0.044 2
U	3 ^[28]	0.008	0.002 5	0.020	0.006 7
Ag	5 ^[28]	0.007	0.001 3	0.015	0.003 1
Be	2 ^[28]	0.001	0.000 6	0.014	0.007 1

评价与膳食评估结果表明,所分析的重金属微量元素和有害微量元素摄入对食用人群没有明显的健康风险。在检测的18种微量元素中,Ba、Cd和Pb对复合污染物风险指数贡献率较高,是主要的风险元素。

参考文献:

- [1] 何中央. 中国稻渔综合种养主要模式与应用推广[EB/OL]. (2017-06-29). <http://www.fishfirst.cn/article-91918-1.html>.
HE Zhong-yang. The main modes and applications of integrated rice field aquaculture in China[EB/OL]. (2017-06-29). <http://www.fishfirst.cn/article-91918-1.html>.
- [2] 王常安, 徐奇友, 闫有利, 等. 我国东北地区稻田养殖的模式概况[J]. 水产学杂志, 2017, 30(3): 57-60.
WANG Chang-an, XU Qi-you, YAN You-li, et al. A review of aquacultural patterns in paddy fields in northeast China[J]. *Chinese Journal of Fisheries*, 2017, 30(3): 57-60.
- [3] Wu Y, Zhang H, Liu G, et al. Concentrations and health risk assessment of trace elements in animal-derived food in southern China[J]. *Chemosphere*, 2016, 144: 564-570.
- [4] Lu L, Liu G, Wang J, et al. Accumulation and health risk assessment of trace elements in *Carassius auratus gibelio* from subsidence pools in the Huainan coalfield in China[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2017, 189(9): 479.
- [5] Li S, He Y, Zhao H, et al. Assessment of 28 trace elements and 17 amino acid levels in muscular tissues of broiler chicken (*Gallus gallus*) suffering from arsenic trioxide[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2017, 144: 430-437.
- [6] Qin D, Jiang H, Bai S, et al. Determination of 28 trace elements in three farmed cyprinid fish species from northeast China[J]. *Food Control*, 2015, 50: 1-8.
- [7] Çelik U, Oehlenschläger J. High contents of cadmium, lead, zinc and copper in popular fishery products sold in Turkish super markets[J]. *Food Control*, 2007, 18(3): 258-261.
- [8] Tuzen M. Toxic and essential trace elemental contents in fish species from the Black Sea, Turkey[J]. *Food & Chemical Toxicology*, 2009, 47(8): 1785-1790.
- [9] 覃东立, 白淑艳, 汤施展, 等. 微波消解-电感耦合等离子体质谱法同时测定水产品中28种微量元素[J]. 食品工业科技, 2014, 35(18): 67-70.
QIN Dong-li, BAI Shu-yan, TANG Shi-zhan, et al. Simultaneous determination of 28 trace elements in aquatic products by microwave digestion-inductively coupled plasma mass spectrometry method[J]. *Science and Technology of Food Industry*, 2014, 35(18): 67-70.
- [10] Zhu F, Qu L, Fan W, et al. Study on heavy metal levels and its health risk assessment in some edible fishes from Nansi Lake, China[J]. *Environmental Monitoring & Assessment*, 2015, 187(4): 1-13.
- [11] 张菲菲, 杨善卿, 徐焱平, 等. 上海市垂钓鱼重金属污染特征与食用安全性[J]. 中国环境科学, 2017, 37(2): 754-760.
ZHANG Fei-fei, YANG Shan-qing, XU Yan-ping, et al. Contamination of heavy metals in game fishes in Shanghai and fish consumption safety assessment[J]. *China Environmental Science*, 2017, 37(2): 754-760.
- [12] 中华人民共和国农业部. NY 5073—2006 无公害食品 水产品中有毒有害物质限量[S]. 北京: 中国农业出版社, 2006.
Ministry of Agriculture of PRC. The safety limitation standard of hazardous and noxious substances in non-environmental pollution aquatic products NY 5073—2006[S]. Beijing: China Agricultural Press, 2006.
- [13] 中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会, 国家食品药品监督管理总局. 食品安全国家标准 食品中污染物限量 GB 2762—2017[S]. 北京: 中国质检出版社, 2017.
National Health and Family Planning Commission of PRC, China Food and Drug Administration. National food safety standards maximum levels of contaminants in foods GB 2762—2017[S]. Beijing: China Zhijian Publishing house, 2017.
- [14] 施沁璇, 孙博博, 王 俊, 等. 钱塘江流域鱼肉中重金属含量特征及食用安全性评价[J]. 上海海洋大学学报, 2017, 26(4): 536-545.
SHI Qin-xuan, SUN Bo-yi, WANG Jun, et al. Study on heavy metal concentration and their food safety assessment in the muscle of fishes in Qiantang River[J]. *Journal of Shanghai Ocean University*, 2017, 26(4): 536-545.
- [15] World Health Organization (WHO). Joint FAO/WHO expert standards program codex alimentarius commission[R]. Geneva: WHO, 2004.
- [16] 国家卫生和计划生育委员会疾病预防控制局. 中国居民营养与慢性病状况报告[M]. 北京: 人民卫生出版社, 2015: 13.
Disease Prevention and Control Bureau of National Health and Family Planning Commission of PRC. Report on Chinese resident's chronic disease and nutrition[M]. Beijing: People's Medical Publishing House, 2015: 13.
- [17] USEPA. Risk-based concentration table[R]. Philadelphia PA: United States Environmental Protection Agency, 2011.
- [18] 张小磊, 王晶晶, 安春华, 等. 郑州沿黄地区养殖鱼类中重金属污染与健康风险评价[J]. 生态环境学报, 2018, 27(2): 350-355.
ZHANG Xiao-lei, WANG Jing-jing, AN Chun-hua, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of heavy metals in cultured fish species along the Yellow River in Zhengzhou[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2018, 27(2): 350-355.
- [19] 和 庆, 彭自然, 张 晨, 等. 长三角地区池塘养殖水产品重金属含量及其健康风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2017, 36(6): 1070-1077.
HE Qing, PENG Zi-ran, ZHANG Chen, et al. Heavy metals content of pond aquaculture products in Yangtze River Delta and the health risk associated with human consumption[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2017, 36(6): 1070-1077.
- [20] 张 聪, 宋 超, 裴丽萍, 等. 太湖流域中华绒螯蟹重金属镉和铬的风险评估[J]. 环境科学与技术, 2017, 40(3): 178-181.
ZHANG Cong, SONG Chao, QIU Li-ping, et al. Distribution pattern and risk assessment of cadmium and chromium in crab (*Eriocheir sinensis*) around Taihu Lake[J]. *Environmental Science & Technology*,

- 2017, 40(3):178-181.
- [21] 姚清华, 颜孙安, 林 虬, 等. 水产品重金属富集规律与风险评估[J]. 福建农业学报, 2014, 29(5):498-504.
YAO Qing-hua, YAN Sun-an, LIN Qiu, et al. Enrichment regularity and risk assessment of heavy metal in aquatic products[J]. *Fujian Journal of Agricultural Sciences*, 2014, 29(5):498-504.
- [22] 张美琴, 陈海仟, 吴光红. 饲料中Pb和Cd在中华绒螯蟹体内的吸收与释放特性[J]. 水产学报, 2016, 40(9):1431-1439.
ZHANG Mei-qin, CHEN Hai-qian, WU Guang-hong. In vivo absorption and release characteristics of Pb and Cd in diet in *Eriocheir sinensis*[J]. *Journal of Fisheries of China*, 2016, 40(9):1431-1439.
- [23] Jiang H, Qin D, Mou Z, et al. Trace elements in farmed fish (*Cyprinus carpio*, *Ctenopharyngodon idella* and *Oncorhynchus mykiss*) from Beijing: Implication from feed[J]. *Food Additives & Contaminants: Part B Surveillance*, 2016, 9(2):132-141.
- [24] 王龙昌, 王 恬, 周岩民. 动物食品中铅污染现状及饲料控制技术研究进展[J]. 食品科学, 2010, 31(13):302-306.
WANG Long-chang, WANG Tian, ZHOU Yan-min. Research progress of lead contamination in animal food and corresponding control technology for feed[J]. *Food Science*, 2010, 31(13):302-306.
- [25] Prasanthi R, Reddy G H, Reddy G R. Calcium or zinc supplementation reduces lead toxicity: Assessment of behavioral dysfunction in young and adult mice[J]. *Nutrition Research*, 2006, 26(10):537-545.
- [26] 覃东立, 汤施展, 白淑艳, 等. 东北地区鲤、鲫、草鱼肌肉中重金属含量评价[J]. 农业环境科学学报, 2014, 33(2):264-270.
QIN Dong-li, TANG Shi-zhan, BAI Shu-yan et al. Heavy metal concentrations in muscle of fishes from the northeast China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2014, 33(2):264-270.
- [27] 魏复盛. 中国土壤环境背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1992:342-344.
WEI Fu-sheng. The soil environmental background values in China [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1992:342-344.
- [28] United States Environmental Protection Agency (USEPA). IRIS advanced search[EB/OL].[2018-02-25]. <https://cfpub.epa.gov/ncea/iris/search/index.cfm>.
- [29] European Food Safety Authority Panel on Contaminants in the Food Chain. Scientific opinion on lead in food[J]. *The EFSA Journal*, 2010, 8(4):1570.