

谭秀慧, 杨洪生, 黄鸿兵, 等. 江苏省中华绒螯蟹镉残留现状与健康风险评价[J]. 江苏农业学报, 2021, 37(5): 1305-1309.
doi: 10.3969/j.issn.1000-4440.2021.05.028

江苏省中华绒螯蟹镉残留现状与健康风险评价

谭秀慧^{1,2,3}, 杨洪生^{1,2,3}, 黄鸿兵¹, 李佳佳¹, 夏莉萍^{1,2,3}, 张秋云^{1,2,3}, 刘畅^{1,2,3}

(1.江苏省淡水水产研究所, 江苏 南京 210017; 2.江苏省水产质量检测中心, 江苏 南京 210017; 3.农业农村部渔业产品质量监督检验测试中心(南京), 江苏 南京 210017)

摘要: 为评估食用江苏省中华绒螯蟹的健康风险, 对江苏省养殖的中华绒螯蟹重金属镉残留进行了调查。于2018–2020年的9–10月, 在江苏省采集399份中华绒螯蟹样本, 用电感耦合等离子体质谱法对样品中的重金属镉含量进行检测。结果表明: 江苏省中华绒螯蟹体内重金属镉含量范围在0.009 50 mg/kg至0.836 00 mg/kg之间, 平均值为0.151 00 mg/kg, 99.0%的样品满足国家相关标准的限量要求。单因子污染指数分析结果显示, 88.5%的样品处于未污染或轻度污染水平。从采集区域的比较结果可以看出, 中华绒螯蟹体内镉含量苏北地区<苏中地区<苏南地区, 苏中和苏南地区没有显著差异, 而苏北地区与苏中地区、苏南地区存在显著差异。人群膳食风险评估结果表明, 正常消费水平下, 靶标危害系数值均小于1, 江苏省中华绒螯蟹中重金属镉对人体健康造成的影响不明显。

关键词: 中华绒螯蟹; 镉; 风险评价

中图分类号: O657.63; TS254.7

文献标识码: A

文章编号: 1000-4440(2021)05-1305-05

Cadmium content in *Eriocheir sinensis* in Jiangsu Province and health risk assessment

TAN Xiu-hui^{1,2,3}, YANG Hong-sheng^{1,2,3}, HUANG Hong-bing¹, LI Jia-jia¹, XIA Li-ping^{1,2,3}, ZHANG Qiu-yun^{1,2,3}, LIU Chang^{1,2,3}

(1. Freshwater Fishery Research Institute of Jiangsu Province, Nanjing 210017, China; 2. Aquatic Products Analysis and Testing Center of Jiangsu Province, Nanjing 210017, China; 3. Fishery Products Quality Supervision and Testing Center (Nanjing), Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Nanjing 210017, China)

Abstract: In order to conduct human health risk assessment of *Eriocheir sinensis* in Jiangsu province, the residues of cadmium in *Eriocheir sinensis* were investigated. The 399 samples of *Eriocheir sinensis* were collected from September to October in 2018–2020, and the contents of cadmium in these samples were determined by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). The results showed that the content of cadmium ranged from 0.009 50 mg/kg to 0.836 00 mg/kg, the average value was 0.151 00 mg/kg, and 99.0 percents of samples could meet the national limits. In addition, 88.5 percents of samples were recorded at uncontaminated and light pollution levels by using the assessment techniques of single factor index. The analysis of different areas showed that cadmium contents from low to high were northern area, central area and southern area, and there was no significant difference in the content of heavy metal cadmium in *Eriocheir sinensis* cul-

收稿日期: 2021-02-25

基金项目: 江苏省农业科技自主创新基金项目[CX(19)3007]; 江苏省“333 高层次人才培养工程”项目(BRA2019093); 江苏省重点研发计划(现代农业)项目(BE2019393)

作者简介: 谭秀慧(1983–), 女, 山东淄博人, 硕士, 高级工程师, 研究方向为水产品质量安全与风险评价。(E-mail) tanxiuhui04@126.com

通讯作者: 杨洪生, (E-mail) yhs713@163.com

tured in central and southern area. However, the content of cadmium of *Eriocheir sinensis* cultured in central and southern area was significant different from that cultured in northern area. The results of human health risk assessment in the current study suggested that there was a low health risk of consuming cadmium in *Eriocheir sinensis*, because the target hazard quotients were less than one in normal consumption.

Key words: *Eriocheir sinensis*; cadmium; risk assessment

镉(Cd),是一种常见的环境污染物^[1-3],毒性大,位居 12 种全球性危害的化学物质之首,并且可通过食物链传递在水生生物体内产生逐级积累和放大作用。随着工农业的发展,环境中镉污染日趋加重。代静等^[4]对大明湖表层沉积物重金属含量进行调查发现,Cd 含量为背景值的 5.20 倍,偏中度污染,是综合生态危害指数构成的最主要的金属。赵汉取等^[5]调查发现浙江地区鱼类养殖池塘表层沉积物中 Cd 的潜在生态风险系数较高。施宸皓等^[6]对洞庭湖湿地周围表层土壤重金属污染调查发现 2016–2018 年期间,Cd 处于中度污染水平。这些研究结果表明在中国的部分地区存在一定的镉污染,对生态环境和人类健康造成威胁^[7]。

中华绒螯蟹(*Eriocheir sinensis*)又称为河蟹,是长江中下游地区重要的水产养殖对象。据统计,2019 年江苏省河蟹养殖面积 2.67×10^5 hm²左右,年产量超过 3.5×10^5 t,年产值近 3.5×10^{10} 元,产量和产值均位居全国第一,河蟹养殖业已成为当前江苏省渔业中的特色和优势产业。研究表明^[8-10],甲壳类动物对重金属镉有较强的富集能力,在一定程度上存在镉超标现象,其镉污染问题越来越得到人们的关注。覃东立等^[11]探讨了东北地区稻田养殖河蟹的微量元素含量水平和食用安全性,发现 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。据研究,太湖流域中华绒螯蟹重金属镉大多处于轻污染和中度污染水平^[12]。江苏省中华绒螯蟹养殖主要集中在太湖、洪泽湖、长江流域,在开展日常重金属监测外,急需对江苏地区中华绒螯蟹中镉污染开展健康风险评价,为中华绒螯蟹合理膳食和质量安全评估提供参考。

本研究以江苏省中华绒螯蟹中镉残留为研究对象,利用单因子污染指数法、靶标危害系数法,对江苏省中华绒螯蟹中镉残留的空间分布特征、最大食用量及健康风险进行系统分析,并对区域人居环境改善提出对策建议。

1 材料与方法

1.1 仪器与试剂

ELAN DRC-e 型电感耦合等离子质谱仪,美国 PerkinElmer 公司产品;TE612-L 电子天平,德国 Sar-

torius 公司产品;CEM Mars6 Classic 微波消解仪,美国 CEM 公司产品;EHD-24 电热消解仪,北京东航科仪仪器有限公司产品;Milli-Q Elix+IQ7000 超纯水仪,美国 Millipore 公司产品。

硝酸(工艺超纯)、过氧化氢(优级纯),均购于国药集团化学试剂有限公司。Cd 标准储备液(1 000 mg/L)、In 内标储备液(1 000 mg/L),均购于国家有色金属及电子材料分析测试中心;质谱调谐液(0.01 mg/L),购于美国 PerkinElmer 公司;GBW10050 大虾成分分析标准物质,购于中国地质科学院地球物理化学勘查研究所。

试验所用器皿均用 15 % 硝酸浸泡 24 h 以上,并用超纯水洗净晾干后备用。

1.2 样品采集

于 2018–2020 年的 9–10 月,采集样本 399 份,每份样本包括同一养殖池塘内的 20 只公蟹和 20 只母蟹。将采集的中华绒螯蟹洗净,去除壳和鳃,取出可食部分匀浆均匀,置于-20 °C 冰箱中冷冻贮存。

1.3 样品测定

1.3.1 样品消解 称取约 1 g 样品置于微波消解罐内罐,加入 6 ml 硝酸、2 ml 过氧化氢,加盖、放置过夜。消解功率 1 600 W,170 °C 消解 30 min。消解结束冷却后,用少量水冲洗内盖,将消解罐置于电热消解仪于 100 °C 蒸发掉部分硝酸,待消解液蒸至 1~2 ml 时,用超纯水定容至 25 ml,混匀待测。同时做试剂空白试验。

1.3.2 仪器条件 使用质谱调谐液对仪器进行优化,优化后的电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS 法)工作条件为:射频功率 1 100 W,等离子体流量 15.00 L/min,雾化气流量 0.90 L/min,辅助气流量 1.20 L/min,样品提取速率 2 ml/min,蠕动泵速 20 r/min。

1.3.3 质量控制 为保证试验结果的准确、可靠,采取质量控制如下:每次分析样品时校准曲线的相关系数达到 0.999 以上;每批样品做一个试验空白,空白值低于方法检出限 0.002 mg/kg;每批样品测定 2 个基体加标,测定的加标回收率在 93.2% 和 102% 之间;每分析 10 个样品,测定一次校准曲线中间质量浓度点,其测定结果与实际质量浓度值相对偏差均 $\leq 10\%$;每 10 个样品添加 1 个大虾成分分析

质控样,保证其测定值在 0.039 ± 0.002 mg/kg范围内;平行样品测定结果的相对偏差 $\leq 20\%$ 。

1.4 评价标准

1.4.1 Cd 污染评价 采用单因子污染指数法(Single factor contamination index)对中华绒螯蟹 Cd 污染情况进行评价,其计算公式为:

$$P_i = \frac{C_i}{S_i}$$

P_i 为污染物镉单因子污染指数, C_i 为镉在样品中的含量(mg/kg), S_i 为镉标准限值(mg/kg)。当 $P_i < 0.2$ 时,表明样品未受重金属镉污染;当 $0.2 \leq P_i \leq 0.6$ 时,表明样品受到镉轻度污染;当 $0.6 < P_i < 1.0$ 时,表明样品受到镉中度污染;当 $P_i \geq 1.0$ 时,则表明样品已受到重金属镉重度污染。

1.4.2 食用健康风险评估 依据美国环境保护署(USEPA)2000年提出的按照人体平均体质量建立风险分析方法,运用靶标危害系数(THQ)评估人体通过食物摄取重金属的风险程度:

$$THQ = \frac{EFr \times ED_{tot} \times FIR \times C}{RfD \times BWa \times Atn}$$

式中, EFr 为接触频率,122 d/a^[13]; ED_{tot} 为平均人寿,70 a; FIR 为消化食物的比率,成人螃蟹摄入率为38.9 g/d; C 为食物中重金属含量,mg/kg; RfD 为参比剂量, $\mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{d})$,重金属镉的 RfD 值为1 $\mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{d})$; BWa 为成人平均体质量,60.6 kg; Atn 为平均接触时间。当 $THQ < 1$ 时,表明重金属镉对暴露人群没有明显的健康风险;当 $THQ > 1$ 时,则存在健康风险。

1.4.3 最大食用量评估 根据世界卫生组织/联合国粮农组织食品添加剂联合专家委员会制定的暂定每周可耐受摄入量($PTWI$),估算每日最大允许摄入量。

1.5 数据处理

数据处理用 IBM SPSS Statistics 24 完成,并利用 Graph Pad Prism 7 进行绘图。

2 结果与分析

2.1 江苏省中华绒螯蟹镉含量分布情况

本研究所采集样品镉检出率为100%,含量0.009 50~0.836 00 mg/kg,平均值为0.151 00 mg/kg,中位数0.118 00 mg/kg,75分位数为0.209 00 mg/kg,95分位数为0.306 00 mg/kg。GB 2762-

2017^[14]和 NY 5073-2006^[15]中规定镉限量(以Cd计);甲壳类水产动物为0.5 mg/kg。采集样品中有4份超出限量标准,超标率为1.00%,样本Cd含量分布情况见图1。

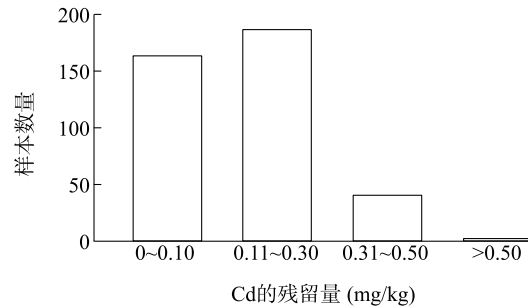


图1 中华绒螯蟹 Cd 含量分布

Fig. 1 Distribution of cadmium (Cd) content in *Eriocheir sinensis*

2.2 江苏省主要养殖区中华绒螯蟹镉残留情况

各采样地点中华绒螯蟹镉质量分数由低到高依次为淮安、宿迁、盐城、苏州、泰州、南通、扬州、常州、镇江、南京、无锡,见表1。

表1 江苏省各采样地点中华绒螯蟹重金属镉检测结果

Table 1 Cd content in *Eriocheir sinensis* from different sampling sites of Jiangsu

采样地点	样本数	检测结果范围 (mg/kg)	平均值 (mg/kg)	超标个数
淮安	30	0.011 3~0.110 0	0.046 2±0.019 7	0
宿迁	54	0.009 5~0.359 0	0.072 3±0.067 2	0
盐城	20	0.029 1~0.235 0	0.095 4±0.057 7	0
南通	12	0.030 8~0.552 0	0.157 0±0.161 0	1
泰州	61	0.028 1~0.427 0	0.156 0±0.097 0	0
扬州	36	0.041 6~0.429 0	0.174 0±0.103 0	0
常州	42	0.059 1~0.653 0	0.215 0±0.115 0	1
南京	29	0.061 0~0.836 0	0.236 0±0.150 0	1
苏州	83	0.029 6~0.584 0	0.142 0±0.096 0	1
无锡	16	0.086 7~0.417 0	0.242 0±0.109 0	0
镇江	16	0.062 1~0.446 0	0.234 0±0.108 0	0

利用箱型图的四分位距对异常值进行 Tukey 检验。由图2可以看出,淮安、宿迁、南通、常州、南京、苏州等地存在异常值,且部分异常值存在超标现象。

将采样地点划分为苏南、苏中和苏北3大区域,各地区样品数量分别为186个、109个、104个。如

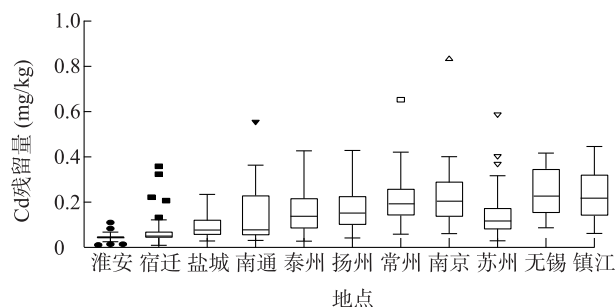


图2 江苏省各采样地点中华绒螯蟹 Cd 含量

Fig.2 Content of Cd in *Eriocheir sinensis* from different sampling sites of Jiangsu

图3所示,镉含量由大到小依次为:苏南地区>苏中地区>苏北地区。对3个地区中华绒螯蟹样品中镉含量进行 Kruskal-Wallis 检验,检验水准 $\alpha=0.05$,苏中和苏南地区没有显著性差异,而苏北地区与苏中和苏南地区存在显著差异。

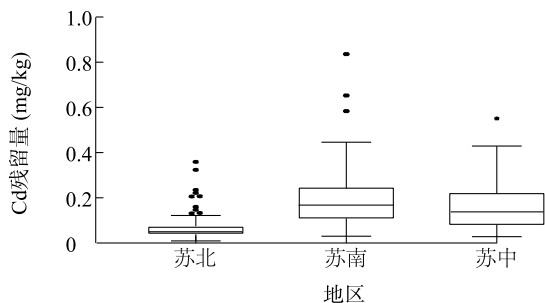


图3 江苏省各地区中华绒螯蟹 Cd 含量

Fig.3 Content of Cd in *Eriocheir sinensis* from different areas of Jiangsu

2.3 江苏省中华绒螯蟹 Cd 污染指数、健康风险评价及最大食用量估计

采集的 399 份样品中,353 份样品处于未污染或轻度污染水平,占 88.5%。42 份样品处于中度污染水平,4 份样品处于重度污染水平(图4)。说明江苏省中华绒螯蟹的养殖环境整体良好。

运用靶标危害系数(THQ)评估中华绒螯蟹对人体的健康风险,得到的 THQ 为 0.002 04~0.179 00,均小于 1(图5)。说明对于一般人群来说,食用中华绒螯蟹造成镉不良影响的可能性不大。

镉 PTWI 值为 0.007 mg/kg,由此计算得到成人中华绒螯蟹每日最大允许摄入量 0.126 kg。按照一只中华绒螯蟹 0.15 kg、可食部分占 1/3 计算,成人每日食用中华绒螯蟹最好不要超过 2.5 只。

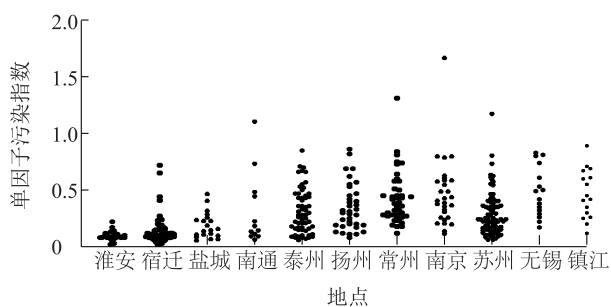


图4 不同采样地点中华绒螯蟹样品 Cd 单因子污染指数

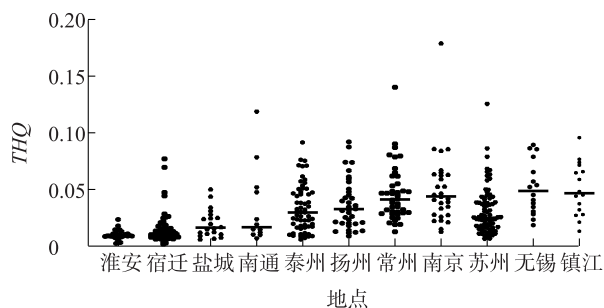
Fig.4 Single factor pollution index of Cd in *Eriocheir sinensis* from different sampling sites of Jiangsu

图5 不同采样地点中华绒螯蟹样品 Cd 靶标危害系数(THQ)

Fig.5 Target hazard quotients (THQ) of Cd in *Eriocheir sinensis* from different sampling sites of Jiangsu

3 讨论

3.1 江苏省中华绒螯蟹镉残留情况

江苏省中华绒螯蟹镉含量为 0.009 50~0.836 00 mg/kg, 平均值为 0.151 00 mg/kg, 合格率达到 99.0%。单因子污染指数分析结果表明,88.5%的样品处于未污染或轻度污染水平,养殖环境整体良好。董欣悦等^[16]调研发现长江水系 70 份样品中镉的平均质量分数为 0.173 mg/kg,与本研究结果接近。张聪等的研究结果显示环太湖流域地区蟹黄镉含量为 0.287 mg/kg^[12],高于本研究中可食部分镉含量,原因可能是中华绒螯蟹肝胰腺对 Cd 富集能力强^[17-18],而本研究中测定的是中华绒螯蟹可食部分(蟹黄和蟹肉的混合样品)。本研究发现部分采样地点中华绒螯蟹镉含量存在超标现象,建议对这些地点的水体、底泥等予以检测,以确认养殖环境是否受到重金属镉污染,必要时采取生态修复措施,以消除中华绒螯蟹食用安全隐患。

3.2 不同地区中华绒螯蟹镉残留的差异性

工业污染源是自然环境中镉的重要来源^[19-23]。

梁流涛等^[24]对江苏省三大区域工业发展与环境污染关系的区域差异分析结果表明,经济发展水平越高,工业经济增长对环境污染的影响越明显,并且持续时间长。有文献报道,阳澄湖、固城湖镉环境背景值偏高^[25]。由于重金属难以降解,在环境尤其是土壤中滞留时间较长^[13],可以通过食物链进入中华绒螯蟹体内。本研究中中华绒螯蟹镉含量呈现苏南地区>苏中地区>苏北地区的分布差异。

3.3 江苏省中华绒螯蟹镉健康风险评估

利用 THQ 法对所采集的中华绒螯蟹样品进行食用健康风险评估,结果显示 THQ 值均小于 1,说明江苏省中华绒螯蟹中重金属镉对人体健康的影响不明显。与本研究风险评估结果相一致,董欣悦等^[16]对辽宁省、山东省和江苏省的中华绒螯蟹中镉进行膳食风险评估,结果表明中国中华绒螯蟹虽存在一定的镉残留,但其膳食风险相对较低。有研究结果^[12]表明,环太湖流域地区中华绒螯蟹中镉大多处于轻度污染和中度污染水平,重金属镉的膳食风险较低,与本研究结果一致,说明正常食用中华绒螯蟹对人体健康风险较低。但是考虑到中华绒螯蟹膳食消费存在个体差异,年龄以及自身健康状况各不相同,应该对老年人、儿童及体弱者等敏感性人群进一步开展有针对性的风险评估研究。

参考文献:

- [1] GIRI S, SINGH A K. Human health risk and ecological risk assessment of metals in fishes, shrimps and sediment from a tropical river [J]. International Journal of Environmental Science & Technology, 2015, 12(7): 2349-2362.
- [2] AHMED M K, BAKI M A, ISLAM M S, et al. Human health risk assessment of heavy metals in tropical fish and shellfish collected from the river Buriganga, Bangladesh [J]. Environmental Science and Pollution Research International, 2015, 22(20): 15880-15890.
- [3] WANG S C, CHU Z X, ZHANG K G, et al. Cadmium-induced serotonergic neuron and reproduction damages conferred lethality in the nematode *Caenorhabditis elegans* [J]. Chemosphere, 2018, 213: 11-18.
- [4] 代静,李欣,王小燕,等. 大明湖表层沉积物重金属污染特征及生态风险评估[J]. 环境化学, 2020, 39(1): 249-263.
- [5] 赵汉取,韦肖杭,王俊,等. 浙北地区养殖池塘表层沉积物重金属潜在生态风险评估[J]. 安全与环境学报, 2014, 14(2): 225-229.
- [6] 施宸皓,王云燕,柴立元,等. 洞庭湖湿地周围表层土壤重金属

- 污染及其人体健康风险评估[J]. 中国有色金属学报, 2020, 30(1): 150-161.
- [7] 王丽娟,吴成业. 水产品中镉的形态分析及其危害[J]. 福建水产, 2014, 36(1): 78-84.
- [8] 张振燕,张美琴,吴光红,等. 江苏淮安地区克氏原螯虾的重金属污染调查与分析[J]. 食品安全质量检测学报, 2012, 3(4): 317-321.
- [9] 张文,吴光红,卢元玲,等. 江苏地区克氏原螯虾中镉的膳食暴露及风险评估[J]. 食品科学, 2017, 38(23): 201-206.
- [10] 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估[J]. 农业环境科学学报, 2017, 36(6): 1070-1077.
- [11] 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估[J]. 农业资源与环境学报, 2019, 36(2): 245-252.
- [12] 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.
- [13] 韩修益. 重金属污染物在土壤中迁移规律研究[J]. 中国资源综合利用, 2018, 36(7): 145-146, 150.
- [14] 中华人民共和国卫生部. 食品安全国家标准 食品中污染物限量: GB 2762-2017 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2017.
- [15] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. 无公害食品水产品中有毒有害物质限量: NY 5073-2006 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2006.
- [16] 董欣悦,宋超,张聪,等. 中国养殖中华绒螯蟹中镉的残留现状及膳食风险评估[J]. 生态环境学报, 2019, 28(3): 564-570.
- [17] 陈海仟,张美琴,吴光红,等. 中华绒螯蟹对 Pb 和 Cd 的富集与释放特性[J]. 水生生物学学报, 2010, 34(4): 828-836.
- [18] 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.
- [19] 朱志军,杨寿山,杨泽忠,等. 广西桂平市稻田土壤酸化与镉污染风险评估探析[J]. 南方农业学报, 2019, 50(7): 1466-1471.
- [20] 高欣,邓芸,季蒙蒙,等. 氨基酸盐对镉污染土壤的淋洗效果[J]. 江苏农业学报, 2020, 36(2): 366-372.
- [21] 曾燕蓉,朱方容,林强,等. 镉胁迫对水培桑苗生长的影响[J]. 南方农业学报, 2019, 50(2): 247-256.
- [22] 石含之,吴志超,王旭,等. 土壤外源镉老化过程中形态变化及影响因素[J]. 江苏农业学报, 2019, 35(6): 1360-1367.
- [23] 王亚婷,党媛,杜焰玲,等. 成都平原典型稻作土壤重金属镉有效性及主要驱动机制[J]. 江苏农业科学, 2020, 48(1): 225-231.
- [24] 梁流涛,郭子萍,王海荣. 工业发展与环境污染关系的区域差异分析——基于江苏省的实证研究[J]. 生态环境学报, 2010, 19(2): 415-418.
- [25] 蒋豫,吴召仕,赵中华,等. 阳澄湖表层沉积物中氮磷及重金属的空间分布特征及污染评价[J]. 环境科学研究, 2016, 29(11): 1590-1599.

(责任编辑:张震林)