

DOI: 10.7524/AJE.1673-5897.20170712001

廖文, 吴烨, 汪光, 等. 广州市居民食品砷摄入的健康风险评价[J]. 生态毒理学报, 2018, 13(5): 272-280

Liao W, Wu Y, Wang G, et al. Human health risk assessment on residents' arsenic ingestion through food in Guangzhou City [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2018, 13(5): 272-280 (in Chinese)

广州市居民食品砷摄入的健康风险评价

廖文^{1,2,3,4}, 吴烨^{3,4}, 汪光^{3,4,*}, 赵文博^{3,4,5}, 李艳静^{3,4}, 李开明^{3,4}, 陈中颖^{3,4}, 任秀文^{3,4}, 吴仁人^{3,4}

1. 中国科学院广州地球化学研究所, 广州 510640
2. 中国科学院大学, 北京 100049
3. 环境保护部华南环境科学研究所, 国家环境保护水环境模拟与污染控制重点实验室, 广州 510655
4. 环境保护部华南环境科学研究所, 广东省水与大气污染防治重点实验室, 广州 510655
5. 河北大学生命科学学院, 保定 071002

收稿日期: 2017-07-12 录用日期: 2017-09-12

摘要: 从暴露途径来看, 食物是人体砷暴露的主要途径之一。从饮食结构来看, 广州市居民膳食主要来源于谷类食品, 同时鱼虾类总体平均摄入量约为全国总体平均摄入量的 2 倍。因此, 在分析广州市市场大米和海鲜这 2 种典型食品中砷含量的基础上对广州市居民食品砷摄入的健康风险进行了评价。分析了广州市场上的 26 种不同品牌的大米中的总砷含量, 其含量范围为 $0.082 \sim 0.171 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$, 平均浓度为 $(0.127 \pm 0.027) \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$, 满足绿色食品大米标准 ($\leq 0.40 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)。在 14 种鱼虾蟹贝类海鲜中的砷含量分析基础上, 计算得出广州市场上鱼类中总砷的平均含量为 $0.488 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$, 虾蟹贝类中总砷的平均含量为 $3.44 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$, 相比较国内外, 广州市场鱼虾蟹中砷的含量整体处于中间水平。最后综合文献调研中其他主要食品中砷的含量, 计算得出广州市成人通过食品每日摄入总砷的量为 $5.08 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1} \text{BW} \cdot \text{d}^{-1}$ 。建议日常饮食需要特别控制每日海鲜的摄入量, 尤其是砷含量较高的濠尿虾、红虾及红蟹、花蟹。

关键词: 砷; 大米; 海鲜; 粤式饮食习惯; 健康风险评价

文章编号: 1673-5897(2018)5-272-09 中图分类号: X171.5 文献标识码: A

Human Health Risk Assessment on Residents' Arsenic Ingestion Through Food in Guangzhou City

Liao Wen^{1,2,3,4}, Wu Ye^{3,4}, Wang Guang^{3,4,*}, Zhao Wenbo^{3,4,5}, Li Yanjing^{3,4}, Li Kaiming^{3,4}, Chen Zhongying^{3,4}, Ren Xiuwen^{3,4}, Wu Renren^{3,4}

1. Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China
2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China
3. National Key Laboratory of Water Environment Simulation and Pollution Control, South China Institute of Environmental Sciences, Ministry of Environmental Protection, Guangzhou 510655, China
4. Guangdong Key Laboratory of Water and Air Pollution Control, South China Institute of Environmental Sciences, Guangzhou 510655, China
5. College of Life Sciences, Hebei University, Baoding 071002, China

基金项目: 国家自然科学基金(21207046); 广东省自然科学基金(S2012010008396); 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2009ZX07528-001)

作者简介: 廖文(1988-), 女, 环境工程博士研究生, 研究方向为环境毒理与健康风险评价, E-mail: liaowen0735@126.com;

* 通讯作者 (Corresponding author), E-mail: wangguang@scies.org

Received 12 July 2017 accepted 12 September 2017

Abstract: Food, especially rice and seafood, is the major pathway of people exposure to arsenic in Guangzhou, China. In order to evaluate human health risk of arsenic from food in this area, 26 samples of rice and 14 of seafood were purchased randomly from the markets and total arsenic concentrations of them were analyzed. Our results showed that the concentrations of arsenic in different rice were in the range of $0.082\text{--}0.171\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ and the average was $(0.127\pm 0.027)\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. Meanwhile, arsenic concentrations in fish and other seafood were $0.488\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ and $3.44\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, respectively. In addition, arsenic in other food in Guangzhou City was also investigated based on data collection from references. By combining data from references with our research results, daily arsenic intake through food by adults in Guangzhou was calculated to be $5.08\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\ \text{body weight}\cdot\text{d}^{-1}$. As a result, more attention should be paid regarding seafood intake in Guangzhou market, especially mantis shrimp, red shrimp, red crab and spotted crab.

Keywords: arsenic; rice; seafood; Cantonese eating habits; human health risk

砷是一种类金属元素,在自然界中普遍存在,其通过污染的水体、食物和空气经食物链进入人体后,随血液流动分布于全身各组织器官,过量砷暴露或微量砷的长期暴露都会对植物、动物和人体产生毒害作用,进而引发多器官组织和功能的异常变化,导致急性或慢性砷中毒^[1-2]。从暴露途径来看,食物是人体砷暴露的主要途径之一。摄入被砷污染的大米、蔬菜、肉类和海鲜类可能导致人体健康风险^[3-6]。因此,为了控制砷的健康风险,不少国家或地区制定了食品中总砷或无机砷的最大容许浓度以及每周耐受摄入量的标准,并通过比较食品中砷摄入量与耐受摄入量来评估食品中砷的健康风险^[7-8]。

总膳食研究表明,我国膳食主要来源于谷类食品,其中米及其米制品占总膳食的85%以上^[9]。我国的大米砷污染问题较为严重。调查显示我国谷类作物中含砷量 $70\sim 830\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,某些砷污染严重的地区如湖南郴州,水稻籽粒中砷的含量高达 $7\ 500\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,是WHO推荐饮用水砷含量的750倍,推荐稻米中砷安全标准的75倍^[7]。大米作为食品砷暴露的主要途径,近年来越来越受到国内外重视^[10-18]。目前广东沿海地区居民大米砷摄入风险研究主要集中在矿区等砷污染严重区域大米砷的富集^[19],对于一般居民大米砷摄入情况应该重点考察市场上售卖的大米。另一方面,砷能够在海产品中富集,目前不少研究显示可食性海藻(海带、紫菜等)、鱼类、贝类等海产品中砷的含量较高,长期摄入这些海产品能导致一定的健康风险,可能造成人体砷慢性中毒^[20-26]。广东沿海地区由于受饮食习惯影响,各类海产品的摄入量较大,鱼虾类摄入量明显高于我国

平均水平,其中广东省鱼虾类总体平均摄入量约为全国总体平均摄入量的2倍,且逐年在上升^[27-28]。并且一些研究表明广东某些海产品中的砷含量较高(接近或者超出国家食品砷标准)^[29-31],因此在对广州市居民食品砷摄入风险进行评价时,另一个关注重点是海产品。蔡文华等^[32-33]对2014年广东省膳食中的砷的人群健康风险进行过评价,计算出广东省人群砷每周摄入量为 $0.2\sim 10.4\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\ \text{BW}$,占联合国粮农组织和世界卫生组织下的食品添加剂联合专家委员会(JECFA)规定的无机砷每周耐受摄入量(PTWI, $15\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\ \text{BW}$)的1.3%~69%,指出广东省居民膳食中砷污染的暴露情况总体来说处于安全水平,但结果仅表示单一食品各自的总砷暴露情况,且只代表广东省的一个平均水平。而各地级市经济发展水平不一,食品来源地也不尽相同,最终将导致砷摄入量有差异。

综上,为了评价广州市居民砷摄入的健康风险,本研究分析了广州市市场大米和海鲜这2种典型食品中砷的含量,同时结合已有文献中其他主要食品中砷的含量,最终得到粤式饮食习惯下广州市市民饮食中砷的暴露量及其健康风险。

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 样品采集与处理

在广州市市场采集不同品牌大米样品共26种,(其中广东省11种、江西省3种、东北地区6种、四川3种、广西3种)。采集后的大米样品自然晾干,用粉碎机粉碎,过60目筛,装袋密封储存于干燥器中备用。

同时在广州某2个海鲜市场采集海鲜样品,包

括鱼、虾、蟹、双壳类等 14 种。同时对采集的海鲜样品的来源(包括产地、野生或者养殖)进行了简单询问调查。采集的海鲜样品去皮、骨头等,清水洗后用超纯水冲洗 3 次,然后绞碎肌肉,于-20 ℃下预冷冻 12 h 后,一部分放入真空冷冻干燥机(ALPHA 1-2, Christ, 德国)内冷冻干燥 72 h,另一部分在-80 ℃下保存。

1.2 样品测定^[34]

准确称取粉碎后的大米样品 0.4 g 或取海鲜样品(湿重 0.5 g,干重 0.2 g),加入 4 mL 硝酸静置直至样品基本溶于硝酸中(4~6 h),然后加入 1 mL 双氧水,之后使用微波消解仪(Mars6, CEM, 美国)进行消解(表 1)。消解液定容至 50 mL 待测。标准物质与空白采用同样方式消解,各平行 3 份。

实验中砷浓度采用 ICP-MS(ICP-MS 7700, Agilent, 美国)测定。实验采用 5% 硝酸逐级稀释砷标准液,由于食品中砷的浓度很低,砷标准曲线的浓度梯度分别为 0.0, 10.0, 20.0, 50.0, 100.0 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。选用 ^{72}Ge 作为内标(10 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$),在线加入。实验测得砷标准曲线相关系数均在 0.9999 以上。测定空白样(5% 硝酸),计算 11 次测定值的 3 倍标准偏差所对应的分析物的浓度值,即为检出限^[35],本研究中计算得到的检出限为 0.093 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

1.3 质量保证与质量控制

本研究中所用的化学试剂均为优级纯或分析纯,使用的超纯水由超纯水器(Milli-Q Element, MILLIPORE, 美国)制备。采用大米标准物质(GBW10043, 中国国家标准物质研究中心,北京)、虾标准物质(GBW10050 (GSB-28), 中国国家标准物质研究中心,北京)、鱼标准物质(Test Material 07225, 食品与环境研究所,英国)验证方法的准确性,大米标准物质中砷含量为 0.114 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,虾标准物质中砷含量为 2.5 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,鱼标准物质中砷的含量为 1.436 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 。采用与样品同样消解方式消解及测定,测得大米总砷含量为 0.0947~0.106 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,虾总砷含

量为 2.456~2.998 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,鱼总砷含量为 1.179~1.410 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,回收率为 82.1%~119.9%,表明本研究所得的实验数据可靠性高。

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 广州市饮食结构分析

通过文献调研分析,根据 2002 年中国居民营养与健康状况调查^[9]、广东省居民膳食营养状况研究^[27]等相关资料数据,可以看出广东省主食以米及其制品为主,其中城市人群中米及其制品占主食的 85%,农村人群中米及其制品占主食的 95.80%。此外该地区鱼虾类摄入量明显高于我国平均水平,其中广东省鱼虾类总体平均摄入量约为全国总体平均摄入量的 2 倍,且广东省内城市鱼虾类的消耗量远高于农村。2006 年的广东省沿海城市居民鱼虾摄入量是 2002 年广东省平均水平的 2 倍以上^[28],表明鱼虾等海鲜是粤式饮食中重要成分,具体情况如表 2 所示。

2.2 典型食品总砷监测结果及污染特征分析

2.2.1 广州市场大米的砷总量

由表 3 可知,广州市场大米中总砷的平均浓度为(0.127±0.027) $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 。从大米产地来看,广州市场东北地区产的大米砷平均含量较低,其次是广西产的大米,江西省产的大米砷平均含量最高。

通过文献调研,表 3 比较了国内不同地区大米总砷的含量,其中北京市场和西宁市场大米含量较低,平均值都低于 0.1 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,其次为福建市场、广州市场和广西部分市场,其总砷含量约为 0.1~0.3 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,但都远低于湖南某污染区大米砷的含量。Zhuang 等^[10]在华南地区采集 3 种不同品牌大米进行风险评价,市场售卖的大米中砷的浓度为 0.086~0.156 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,与本研究中的结果类似。由此可以看出广州市场大米砷含量在国内同类市场中相对较低。绿色食品大米标准(NY/T418—2000)中规定砷 ≤ 0.40 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,从已有样品的砷含量来看,广州市场大米总砷含量均满足绿色食品大米标准。

表 1 微波消解步骤

Table 1 Microvave digestion programme

步骤 Stage	最大功率/W Maximum power/W	爬升时间/min Raising time/min	温度/℃ Temperature/℃	停留时间/min Retention time/min
1	1 600	6	120	2
2	1 600	5	150	5
3	1 600	4	180	15

由表 3 可直观看出,西班牙、美国等国家某些大米较广州市场总砷浓度高;泰国大米砷浓度约在 $0.07\sim 0.11\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 左右,较本研究大米中砷浓度略低。由此可见,广州市场大米砷浓度含量处于中间水平,风险相对较小。

2.2.2 广州市场海鲜中砷的量

对于海鲜中砷的含量,研究大多在湿重形式下检测,而居民膳食组成中的海产品不仅包括新鲜食材,还有晒干或者烘干后的食材。本研究分别测定了冷冻干燥前后海鲜中砷的含量,本研究数据显示,广州市场中海鲜的含水率为 $77.09\%\sim 86.20\%$,干重形式下砷的含量是湿重情况下的 4~7 倍(表 4)。由

表 4 可知,砷的含量大小为:蟹类>虾类>双壳类>鱼类。湿重形式下鱼类砷的含量为 $0.0064\sim 1.623\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,虾类砷的含量为 $0.082\sim 14.683\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,蟹类砷的含量为 $19.287\sim 19.722\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,双壳类中砷的含量为 $0.541\sim 1.498\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 。

结果表明,鱼类中咸水鱼中砷的含量大于淡水鱼,与谢文平等^[23]检测广东市场的淡水鱼(罗非鱼)中砷的含量结果一致(其中砷的平均含量低,为 $0.029\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)。Jiang 等^[5]检测得到江苏省某镇的鱼类中砷的含量为 $0.025\sim 0.074\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,虾中砷的含量为 $0.194\sim 0.657\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,蟹类中砷的含量为 $0.393\sim 0.657\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,低于本研究得到的结果。Zhang 等^[24]对深

表 2 广东省及其沿海地区粮食类及鱼虾类食品摄入量
Table 2 Grains and shrimps intake of Guangdong Province and its coastal region

食品 摄入量/(g·d ⁻¹) Food intake/(g·d ⁻¹)	全国(2002 年) China (2002)			广东省(2002 年) Guangdong Province (2002)			广东省沿海城市居民(2006 年) Coastal city in Guangdong (2006)
	总体	城市	农村	总体	城市	农村	总体
	Overall	City	Village	Overall	City	Village	Overall
米及其制品 Rice and its products	238.3	217.8	246.2	346.4	290.7	371.7	/
面及其制品 Flour and its products	140.2	131.9	143.5	28.0	48.0	14.5	/
其他谷类 Other cereals	23.6	16.3	26.4	4.7	9.1	1.8	/
鱼虾类 Seafood	29.6	44.9	23.7	51.8	70.8	39.0	124(鱼类 Fish, 57.4; 虾蟹贝类 Shrimp, crab and shellfish, 66.6)

表 3 广州市场大米中总砷含量与我国其他地区及国外比较
Table 3 Comparison of total arsenic of rice in Guangzhou market with other regions

大米来源 Rice sources	砷含量平均值/($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) Average As concentration/($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	砷含量范围/($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) Concentration range of As/($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)
广东出产 Guangdong origin	0.126	0.082~0.167
江西出产 Jiangxi origin	0.152	0.131~0.171
广州市场 Guangzhou market (n=26)	0.116	0.084~0.152
东北出产 northeast China origin	0.150	0.137~0.167
四川出产 Sichuan origin	0.121	0.084~0.131
广西出产 Guangxi origin	0.127±0.027	0.082~0.171
广州市场整体 Guangzhou market	0.097	未检出~0.218
北京市场 ^[4] Beijing market ^[4]	0.415	0.157~2.885
湖南某污染区 ^[4] Hunan polluted areas ^[4]	0.054	0.014~0.097
西宁市市场 ^[11] Xining market ^[11]	0.230	0.111~0.372
广西农产品(南宁、桂林、百色等) ^[12] Guangxi agricultural products (Nanning, Guilin, Baise, et al) ^[12]	0.105	0.003~0.813
福建市场 ^[13] Fujian market ^[13]	-	0.14~0.53
西班牙 ^[14-16] Spain ^[14-16]	-	0.028~0.54
印度 ^[16-17] India ^[16-17]	-	0.34
美国 ^[18] USA ^[18]	-	0.2~0.3
孟加拉国 ^[18] Bangladesh ^[18]	-	0.07~0.11
泰国 ^[18] Thailand ^[18]	-	

圳某海水养殖区的河豚和石斑鱼进行检测,其中肌肉组织中砷的含量(干重)分别为 $1.04\sim 1.86\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $2.59\sim 7.85\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,与本研究中的多宝鱼和老虎斑的结果类似。另外,Leufroy 等^[25]采用干重形式在对法国某地市场中的海鲜中砷含量进行测定时,砷的含量大小比较也与本研究发现的趋势一致。Muñoz 等^[26]曾对鱼虾蟹中的砷含量进行测定,发现虾中总砷含量可达 $102.03\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重),较广州市场同种虾的砷含量高。

因此,相比较国内外鱼虾中砷的含量,广州市场整体处于中间水平,除个别含量较高,日常选食时,应该特别注意。食品基质中砷的含量不一,一方面海鲜中砷含量的多少与其生长的环境中砷的污染水平有关;另一方面与选取的研究对象有关,包括种类、大小,例如肉食性鱼中砷的含量高于非肉食性鱼,大鱼比小鱼富集砷的水平高^[8]。

2.2.3 广州市场其他食品中砷含量的调研

表 5 综合比较了广州市及其周边地区大米、海鲜、蔬菜、水果等食物中的砷含量。从食物的种类比较可以看出主食大米和面制品中砷含量最高,其次是

蔬菜,蛋类和肉类中砷的含量最低。从表中可以看出广州及周边市场总砷含量基本满足国家的砷污染物限量标准(《食品中污染物限量》)(GB 2762—2012)。

2.3 广州市居民食品摄入的健康风险评价

根据本研究以及文献收集的广州市主要食品相关数据,基于已有的广东省膳食结构调查结果^[27-28],通过膳食结构调查中各类食品的摄入量数据乘以食品中总砷含量数据,可以计算出广州市主要食品摄入的总砷的暴露量。值得关注的是,本研究中濠尿虾、红虾、红蟹和花蟹砷的含量最高达 $19.722\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,均来自珠江一带,对照《食品中污染物限量》(GB 2762—2012)及相关食品限量要求,食用这类海鲜,摄入砷的风险非常大。笔者特地去广州市 2 个大型海鲜市场和 5 个菜市场进行了简单调研,发现居民日常选购鱼虾蟹时,更多会选择鲫鱼、鲮鱼、对虾、基围虾、蛤蜊等,因此在进行鱼虾蟹贝类中砷的风险评价时采取了加权平均。按照市场调研及餐桌饮食调查,在本研究中,鱼类中鲮鱼和鲫鱼占 70%,其他鱼类占 30%;虾贝类中,对虾、基围虾、蛤蜊占 70%,其他类占 30%(表 5, 6)。

表 4 广州市场鱼虾蟹总砷含量
Table 4 Total arsenic amount of seafood in Guangzhou market

序号 No.	来源 Origin	样品名称 Samples	含水率/% Moisture/%	砷平均含量/ ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 干重) Average As contents based on dry weight/ ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	砷平均含量/ ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 湿重) Average As contents based on wet weight/ ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)
1	珠海(人工养殖) Zhuhai (breeding)	多宝鱼(<i>Scophthalmus maximus</i>)	82.73	5.533	0.956
	青海(人工养殖) Qinghai (breeding)		80.16	8.177	1.623
	青海(人工养殖) Qinghai (breeding)		81.26	5.901	1.351
2	珠海(人工养殖) Zhuhai (breeding)	老虎斑(<i>Blotchy rock cod</i>)	79.05	2.614	0.548
	海南(人工养殖) Hainan (breeding)		76.34	4.649	1.100
3	南沙(人工养殖) Nansha (breeding)	鲮鱼(<i>Mesoclupea</i>)	80.54	2.224	0.433
4	南沙(人工养殖) Nansha (breeding)	鲫鱼(<i>Carassius auratus</i>)	78.12	0.032	0.0064
5	珠海(野生) Zhuhai (wild)	濠尿虾(<i>Oratosquilla oratoria</i>)	86.20	43.753	6.039
6	湛江(野生) Zhanjiang (wild)		85.52	67.280	9.745
7	珠海(野生) Zhuhai (wild)	红虾(<i>Solenocera melantho</i>)	79.52	71.709	14.683
8	珠海(野生) Zhuhai (wild)	对虾(<i>Fenneropenaeus chinensis</i>)	77.09	1.312	0.301
9	珠海(人工养殖) Zhuhai (breeding)	基围虾(<i>Metapenaeus ensis</i>)	81.23	0.367	0.082
10	珠江口(野生) Pearl River (wild)	红蟹(<i>Birguslatro</i>)	83.64	117.917	19.287
11	珠江口(野生) Pearl River (wild)	花蟹(<i>Portunus pelagicus</i>)	80.00	98.624	19.722
12	北海(人工养殖) Beihai (breeding)	扇贝(<i>Escallop</i>)	84.20	9.484	1.498
13	湛江(人工养殖) Zhanjiang (breeding)	牡蛎(<i>Ostrea gigas</i> Thunberg)	85.08	3.624	0.541
14	南沙(人工养殖) Nansha (breeding)	蛤蜊(<i>Clam</i>)	85.16	8.325	1.236

表 5 广州市场主要食品总砷含量
Table 5 Total arsenic of main food in Guangzhou market

食品类别 Food category	采样时间 及地点 Sampling time and location	砷含量平均值 $/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$ Average As contents $/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	砷含量范围 $/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$ Range of As contents $/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	无机砷限量标准 $/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$ Limits of inorganic As $/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	备注 Reference
大米 Rice	2013—2016 年广州市场和超市 Guangzhou market and supermarket (2013-2016)	0.127	0.082~0.171	0.15	本研究 This study
蔬菜 Vegetables	2010 年郊区主要菜地 Vegetable field in Guangzhou suburbs (2010)	0.0208	ND~0.0594	0.05	[36]
水果 Fruits	2009 年批发、农贸市场和超市 Guangzhou market and supermarket (2009)	0.0178	ND~0.0498	0.05	[37]
面制品 Flour products	2000—2002 年 广东省韶关、湛江、汕头、深圳、广州市 Guangdong Province (Shaoguan, Zhanjiang, Shantou, Shenzhen, Guangzhou) (2000-2002)	0.108	0.001~0.400	0.1	
鲜蛋 Eggs		0.024	0.001~0.014	0.05	[38]
肉类 Meat		0.037	0.001~0.220	0.05	
鱼类 Fish	2016—2017 年广州市场和超市 Guangzhou market and supermarket (2016-2017)	0.488	0.0064~1.623	0.1	本研究 This study
虾蟹贝类 Other seafood	2016—2017 年广州市场和超市 Guangzhou market and supermarket (2016-2017)	3.44	0.082~19.722	0.5	

表 6 广州市主要食品的砷暴露量
Table 6 Arsenic exposure doses of main foods in Guangzhou City

食品类别 Food category	砷含量 $/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$ As contents $/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	日均食品 摄入量/g Daily intake of food/g	日均砷摄入量 $/\mu\text{g}$ Daily intake of As/ μg	日均砷摄入 占比/% Percents of As intake/%	备注 Reference
大米 Rice	0.134	290.7	38.95	12.36	本研究 This study
蔬菜 Vegetables	0.0208	313.8	6.53	2.07	[36]
水果 Fruits	0.0178	70.1	1.25	0.40	[37]
面制品 Flour products	0.108	48.0	5.18	1.64	
鲜蛋 Eggs	0.024	27.6	0.66	0.21	[38]
肉类 Meat	0.037	208	7.70	2.44	
鱼类 Fish	0.448	57.4	25.72	8.16	本研究 This study 本研究 This study 其中濠尿虾、红虾、红蟹和花蟹 日均砷摄入量分别为 157.68、 293.37、385.35 和 394.05 μg Daily intake of As from <i>Oratosquilla</i> <i>oratoria</i> , <i>Solenocera melanthro</i> , <i>Birguslatro</i> , <i>Portunus pelagicus</i> is 157.68, 293.37, 385.35 and 394.05 μg
虾贝类 Other seafood	3.44	66.6	229.10	72.71	
主要食品总摄入量 Overall intake			315.09		

由表6可知,广州市主要食品摄入的砷日暴露量为 $315.09\ \mu\text{g}$,其中通过虾贝类摄入的砷总量最多,日均为 $229.1\ \mu\text{g}$,占72.71%。其次是大米类,日均为 $38.95\ \mu\text{g}$,占12.36%。据中国人群暴露参数手册(成人卷)中城市成人体重平均为62 kg,则广州市成人通过食品每日摄入砷的量为 $5.08\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\text{BW}\cdot\text{d}^{-1}$,同时本研究表明虾贝类中,濠尿虾、红虾、红蟹和花蟹浓度较高,根据唐洪磊^[28]调查显示广东虾贝类平均每日摄入为66.6 g,结合市场调查,濠尿虾、红虾、红蟹和花蟹等在虾贝类中最大占比为30%,如果每日单独摄入这4种海鲜为19.98 g($66.6\text{ g}\times 30\%$),那么日均砷摄入量分别为157.68、293.37、385.35和394.05 μg (表6),换算得到成人通过其每日摄入砷的量分别为2.54、4.73、6.22和6.36 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\text{BW}\cdot\text{d}^{-1}$,风险增大,但低于FAO/WHO公布的总砷的每日最高允许摄入量(TDMI, $50\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\text{BW}$),本研究结果表明广州市成人通过食品每日平均摄入总砷的量相对安全。

蔡文华等^[32-33]计算得出广东省大米、海水鱼、软体类等单一类别食品砷暴露量,其中海水鱼类砷暴露量最大,其次为大米,与本研究相符。而刘辉等^[39]研究了杭州市居民膳食砷摄入风险,结果表明谷类对杭州市居民个体总体砷摄入量贡献率最高,为50.30%,其次为水产类(19.69%)和蔬菜菌藻类(14.82%)。在中国,谷物为主食,日均摄入量较大,而土壤中的砷在大米中容易积累,因此大米是食品砷暴露的重点。另外,相对国内其他地方来说,广州人具有好食海鲜的特殊性,而环境中的砷更容易在水生生物中富集,因此广州居民食品砷暴露主要集中在海鲜和大米。当每日摄入砷含量较高的海鲜(如本研究中的濠尿虾、红虾、红蟹和花蟹)的量大于平均摄入量时,风险大大增加,而食用虾蟹类海鲜频次少的,则食品砷摄入风险将低于本研究。因此,对于广州市居民来说,尤其是鱼虾类摄入量较高的部分人群,总砷暴露风险仍需要保持关注。

综上,大米和海鲜是广州市成人食品砷暴露的主要途径。广州市成人通过食品每日摄入总砷为 $5.08\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\text{BW}\cdot\text{d}^{-1}$,通过虾贝类摄入的总砷占总量的72.71%,大米类则占12.36%。由于广州市场的濠尿虾、红虾及红蟹、花蟹中总砷含量较高,最高可达 $19.7\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,日常饮食需要特别控制每日虾贝类的摄入量。将计算得到的每日摄入总砷的量与FAO/WHO公布的总砷的每日最高允许摄入量对

比,广州市成人通过食品每日摄入总砷的量是相对安全的。

本研究未考虑所有的食品摄入以及通过水、土壤等环境介质摄入的砷,同时尚未单独考察无机砷的含量,因此,砷暴露风险仍有相对不确定性。

通讯作者简介:汪光(1979-),男,环境科学博士,高级工程师,主要研究方向为毒害污染物健康及生态风险评价,在国内外环境领域期刊上发表论文30余篇,其中SCI收录论文18余篇。

参考文献(References):

- [1] 高健伟, 韦炳干, 薛源, 等. 地方性砷中毒地区环境砷暴露健康风险研究进展[J]. 生态毒理学报, 2013, 8(2): 138-147
Gao J W, Wei B G, Xue Y, et al. Review on health risks of environmental arsenic exposure in endemic arsenism areas [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2013, 8 (2): 138-147 (in Chinese)
- [2] 欧阳通, 刘耀兴, 李秋蓉, 等. 砷污染土壤对人体健康的风险评估应用[J]. 华侨大学学报: 自然科学版, 2008, 29(1): 152-155
Ouyang T, Liu Y X, Li Q R, et al. *In vitro* assessing risk of As-contaminated soils to human health [J]. Journal of Huaqiao University: Natural Science, 2008, 29(1): 152-155 (in Chinese)
- [3] 李筱薇, 高俊全, 王永芳, 等. 2000年中国总膳食研究——膳食砷摄入量[J]. 卫生研究, 2006, 3(3): 323-325
Li X W, Gao J Q, Wang Y F, et al. 2000 Chinese total dietary study—The dietary arsenic intakes [J]. Journal of Hygiene Research, 2006, 3(3): 323-325 (in Chinese)
- [4] 王远征, 滕曼, 杜心, 等. 北京市场大米和小麦面粉中砷的含量及其形态分析[J]. 环境化学, 2007(6): 850-853
Wang Y Z, Teng M, Du X, et al. Concentration and speciation of arsenic in rice grains and wheat flour from Beijing market [J]. Environmental Chemistry, 2007(6): 850-853 (in Chinese)
- [5] Jiang Y X, Zeng X C, Fan X T, et al. Levels of arsenic pollution in daily foodstuffs and soils and its associated human health risk in a town in Jiangsu Province, China [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2015, 122: 198-204
- [6] 谢正苗, 李静, 陈建军, 等. 中国蔬菜地土壤重金属健康风险基准的研究[J]. 生态毒理学报, 2006, 1(2): 172-179
Xie Z M, Li J, Chen J J, et al. Study on guidelines for health risk to heavy metals in vegetable plantation soils in

- China [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2006, 1(2): 172-179 (in Chinese)
- [7] 段桂兰, 王利红, 陈玉, 等. 水稻砷污染健康风险与砷代谢机制的研究[J]. 农业环境科学学报, 2007, 26(2): 430-435
- Duan G L, Wang L H, Chen Y, et al. Health risk from consumption of rice with elevated arsenic and studies of arsenic metabolism in rice plants [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2007, 26(2): 430-435 (in Chinese)
- [8] European Food Safety Authority (EFSA). Dietary exposure to inorganic arsenic in the European population [J]. EFSA Journal, 2014, 12(3): 3597
- [9] 杨晓光. 2002 年中国居民营养与健康状况调查[C]. 北京: 营养与健康研究新进展国际学术研讨会论文集, 2005
- Yang X G. A description on the Chinese national nutrition and health survey in 2002 [C]. Beijing: Conference Proceeding of International Symposium on Nutrition and Health Research New Progress, 2005 (in Chinese)
- [10] Zhuang P, Zhang C S, Li Y W, et al. Assessment of influences of cooking on cadmium and arsenic bioaccessibility in rice, using an *in vitro* physiologically-based extraction test [J]. Food Chemistry, 2016, 213: 206-214
- [11] 常建军. 西宁市售大米汞、砷污染状况及健康风险评估[J]. 江苏农业科学, 2010, 3(3): 390-391
- Chang J J. Health risk assessment of Hg and As in rice sold in Xi'ning City [J]. Jiangsu Agricultural Sciences, 2010, 3(3): 390-391 (in Chinese)
- [12] 覃志英, 唐振柱, 梁江明, 等. 2002-2004 年广西主要农产品铅镉砷汞污染调查分析[J]. 微量元素与健康研究, 2006, 23(4): 29-32
- Tan Z Y, Tang Z Z, Liang J M, et al. Analysis on lead, cadmium, arsenic and mercury in agricultural products of Guangxi Province during 2002-2004 [J]. Studies of Trace Elements and Health, 2006, 23(4): 29-32 (in Chinese)
- [13] 李刚, 郑茂钟, 朱永官, 等. 福建省稻米中的砷水平及其健康风险研究[J]. 生态毒理学报, 2013, 8(2): 148-155
- Li G, Zheng M Z, Zhu Y G, et al. Studies on arsenic levels and its health risk of rice collected from Fujian Province [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2013, 8(2): 148-155 (in Chinese)
- [14] Ferré-Huguet N, Martí-Cid R, Schuhmacher M, et al. Risk assessment of metals from consuming vegetables, fruits and rice grown on soils irrigated with waters of the Ebro River in Catalonia, Spain [J]. Biological Trace Element Research, 2008, 123: 66-79
- [15] Laparra J M, Velez D, Barberá R, et al. Bioavailability of inorganic arsenic in cooked rice: Practical aspects for human health risk assessments [J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2005, 53: 8829-8833
- [16] Sengupta M K, Hossain M A, Mukherjee A, et al. Arsenic burden of cooked rice: Traditional and modern methods [J]. Food and Chemical Toxicology, 2006, 44(11): 1823-1829
- [17] Pal A, Chowdhury U K, Mondal D, et al. Arsenic burden from cooked rice in the populations of arsenic affected and nonaffected areas and Kolkata City in West-Bengal, India [J]. Environmental Science & Technology, 2009, 43(9): 3349-3355
- [18] Juhasz A L, Smith E, Weber J, et al. *In vivo* assessment of arsenic bioavailability in rice and its significance for human health risk assessment [J]. Environmental Health Perspectives, 2006, 114: 1826-1831
- [19] 刘志彦, 田耀武, 陈桂珠. 矿区周围稻米重金属积累及健康风险分析[J]. 生态与农村环境学报, 2010, 26(1): 35-40
- Liu Z Y, Tian Y W, Chen G Z. Accumulation of heavy metals in rice growing around mining area and its human risk analysis [J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2010, 26(1): 35-40 (in Chinese)
- [20] Devesa V, Velez D, Montoro R. Effect of thermal treatments on arsenic species contents in food [J]. Food Chemical Toxicology, 2008, 46(1): 1-8
- [21] Maulvault A L, Machado R, Afonso C, et al. Bioaccessibility of Hg, Cd and As in cooked black scabbard fish and edible crab [J]. Food and Chemical Toxicology, 2011, 49: 2808-2815
- [22] Cano-Sancho G, Perelló G, Maulvault A L, et al. Oral bioaccessibility of arsenic, mercury and methylmercury in marine species commercialized in Catalonia (Spain) and health risks for the consumers [J]. Food and Chemical Toxicology, 2015, 86: 34-40
- [23] 谢文平, 朱新平, 郑光明, 等. 广东罗非鱼养殖区水体和鱼体中重金属、HCHs、DDTs 含量及风险评估[J]. 环境科学, 2014, 35(12): 4663-4670
- Xie W P, Zhu X P, Zheng G M, et al. Residues and health risk assessment of HCHs, DDTs and heavy metals in water and tilapias from fish ponds of Guangdong [J]. Environmental Science, 2014, 35(12): 4663-4670 (in Chinese)
- [24] Zhang W, Wang W X, Zhang L. Comparison of bioavailability and biotransformation of inorganic and organic arsenic to two marine fish [J]. Environmental Science & Technology, 2016, 50: 2413-2423
- [25] Leufroy A, Noël L, Beauchemin D, et al. Bioaccessibility of total arsenic and arsenic species in seafood as determined by a continuous online leaching method [J]. Ana-

- lytical and Bioanalytical Chemistry, 2012, 402: 2849-2859
- [26] Muñoz O, Devesa V, Suñer M A, et al. Total and inorganic arsenic in fresh and processed fish products [J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2000, 48: 4369-4376
- [27] 马文军, 邓峰, 许燕君, 等. 广东省居民膳食营养状况研究[J]. 华南预防医学, 2005, 1(1): 1-5
- Ma W J, Deng F, Xu Y J, et al. The study on dietary intake and nutritional status of residents in Guangdong, 2002 [J]. South China Journal of Preventive Medicine, 2005, 1(1): 1-5 (in Chinese)
- [28] 唐洪磊. 广东省沿海城市居民膳食结构及食物污染状况的调研——对持久性卤代烃和重金属的人体暴露水平评价[D]. 北京: 中国科学院研究生院, 2008: 10-24
- Tang H L. A preliminary survey on the nutritional structures for costal residents of Guangdong Province, China and food pollution—Assesement of human exposure to persistent halogenated hydrocarbons and heavy metals [D]. Beijing: Graduate School of Chinese Academy of Sciences, 2008: 10-24 (in Chinese)
- [29] 陈清香, 杨文, 初庆柱. 湛江硇洲岛海域19种贝类食用部位的重金属含量及评价[J]. 生态环境学报, 2011, 20(1): 175-180
- Chen Q X, Yang W, Chu Q Z. Assessment on contents of heavy metals in the edible parts of 19 mollusks from Naozhou Island, Zhanjiang [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2011, 20(1): 175-180 (in Chinese)
- [30] 黄长江, 赵珍. 湛江港海域海产品中重金属残留及评价[J]. 汕头大学学报: 自然科学版, 2007, 22(1): 30-36
- Huang C J, Zhao Z. Assessment on contents of heavy metal in seafoods from Zhanjiang Harbor [J]. Journal of Shantou University: Natural Science, 2007, 22(1): 30-36 (in Chinese)
- [31] 贾晓平, 林钦, 蔡文贵, 等. 大亚湾海洋生物体中的砷[J]. 海洋环境科学, 1996(2): 7-11
- Jia X P, Lin Q, Cai W G, et al. Arsenic in marine organisms in the Daya Bay [J]. Marine Environmental Science, 1996(2): 7-11 (in Chinese)
- [32] 蔡文华, 胡曙光, 苏祖俭, 等. 2007~2014 广东省膳食中铅、镉、砷、汞元素的人群健康风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2015, 6(6): 2308-2316
- Cai W H, Hu S G, Su Z J, et al. A health assessment of lead, cadmium, arsenic and mercury in dietary in Guangdong Province during 2007 to 2014 [J]. Journal of Food Safety and Quality, 2015, 6(6): 2308-2316 (in Chinese)
- [33] 蔡文华, 胡曙光, 苏祖俭, 等. 2014 年广东省居民重点食品中金属污染物的健康风险评估[J]. 环境与健康杂志, 2016, 33(6): 536-540
- Cai W H, Hu S G, Su Z J, et al. Health risk assessment of metals contamination in main food in Guangdong in 2014 [J]. Journal of Environmental Health, 2016, 33(6): 536-540 (in Chinese)
- [34] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. SN/T 0448—2011, 进出口食品中砷、汞、铅、镉的检测方法电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)法[S]. 北京: 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 2011
- [35] Klaue B, Blum J D. Traceanalyses of arsenic in drinking water by inductively coupled plasma mass spectrometry: High resolution versus hydride generation [J]. Analytical Chemistry, 1999, 71: 1408-1414
- [36] 赵凯, 文典, 王其枫, 等. 广州市郊蔬菜重金属污染研究[J]. 广东农业科学, 2012, 39(11): 178-180
- Zhao K, Wen D, Wang Q F, et al. Investigation of heavy metal pollution in vegetables in Guangzhou suburban [J]. Guangdong Agricultural Sciences, 2012, 39(11): 178-180 (in Chinese)
- [37] 余光辉, 张磊, 何树悠, 等. 广州市水果中砷含量特征分析[J]. 食品工业科技, 2010, 4(4): 328-329
- Yu G H, Zhang L, He S Y, et al. Analysis of arsenic contents of fruit in Guangzhou City [J]. Science and Technology of Food Industry, 2010, 4(4): 328-329 (in Chinese)
- [38] 梁春穗, 邓峰, 黄伟雄, 等. 广东省食物中化学污染物的网点监测与动态分析[J]. 中国食品卫生杂志, 2003, 5(5): 395-401
- Liang C S, Deng F, Huang W X, et al. Network monitoring and dynamic analysis of chemical contaminants in agricultural products in Guangzhou [J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2003, 5(5): 395-401 (in Chinese)
- [39] 刘辉, 黄利明, 印晓虹. 居民膳食砷摄入水平调查[J]. 浙江预防医学, 2015(6): 547-550
- Liu H, Huang L M, Yin X H. An analysis on the dietary arsenic intake level among residents in Hangzhou City [J]. Zhejiang Preventive Medicine, 2015(6): 547-550 (in Chinese)