

风险评估

市售鸡肉与鸡蛋中四环素类抗生素残留调查与膳食暴露风险评估

王姝婷,黄希汇,刘少颖,任韧,龚立科

(杭州市疾病预防控制中心,浙江 杭州 310021)

摘要:目的 了解杭州地区市售鸡肉与鸡蛋中四环素类抗生素残留的污染状况,探讨其污染来源,评价其膳食安全性。方法 2021年在杭州市随机抽取66份鸡肉样品和71份鸡蛋样品,采用液相色谱-质谱/质谱法监测四环素类抗生素(四环素、土霉素、金霉素和强力霉素),采用食品安全指数来评估样品中四环素类抗生素的残留风险。结果 鸡肉中检出强力霉素与土霉素,检出率分别为45.4%和1.52%,四环素与金霉素均未检出,无超标样品;鸡蛋中强力霉素检出率与超标率均为1.41%,其余项目均未检出;鸡肉与鸡蛋中四种四环素的食品安全指数远<1,说明其污染程度对食品安全影响很小。结论 杭州地区市售鸡肉和鸡蛋中存在一定的四环素类抗生素残留,但污染程度较轻,鸡肉与鸡蛋的安全状态均为可接受。

关键词:鸡肉;鸡蛋;四环素类抗生素;残留;食品安全指数

中图分类号:R155 文献标识码:A 文章编号:1004-8456(2023)07-1063-04

DOI:10.13590/j.cjfh.2023.07.014

Investigation and dietary exposure risk assessment of tetracycline antibiotics residues in eggs and chicken sold on the market

WANG Shuting, HUANG Xihui, LIU Shaoying, REN Ren, GONG Like

(Hangzhou Municipal Center for Disease Control and Prevention, Zhejiang Hangzhou 310021, China)

Abstract: Objective To determine the levels of tetracycline antibiotic residues in eggs and chicken sold on the market in Hangzhou, the pollution sources were explored, and their dietary exposure risk was evaluated. **Methods** A total of 66 chicken and 71 egg samples were randomly collected from Hangzhou in 2021 for the detection of tetracycline antibiotics by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry, including tetracycline, oxytetracycline, aureomycin, and doxycycline. The risk of tetracycline antibiotic residues in samples was evaluated by food safety index. **Results** The detection rate of doxycycline and oxytetracycline in chicken samples were 45.4% and 1.52%, respectively. Tetracycline and aureomycin residues were not detected, and no samples exceeded the standards. Of the four antibiotics, only doxycycline residues were detected in egg samples, and the detection rate and over standard rate were both 1.41%. The overall food safety indices of four tetracyclines were less than one, indicating that eggs and chicken in Hangzhou were safe for consumption. **Conclusion** Tetracycline antibiotics residues were found in eggs and chicken in Hangzhou, while the overall contamination level was low. The safety status of eggs and chicken in Hangzhou was thus considered acceptable.

Key words: Chicken; egg; tetracycline antibiotic; residues; food safety indexes

兽药应用对促进畜禽养殖业的发展具有重要作用,四环素类抗生素通过抑制细菌蛋白质合成来达到抗菌效果,具有抗菌谱广、使用方便、价格低廉等优点。近年来,随着畜牧养殖业的快速发展,四

环素类药物已成为应用最为广泛的兽用抗生素之一^[1-3]。但畜禽养殖过程中滥用四环素类抗生素而导致的畜禽组织兽药残留、病原微生物产生耐药性和动物食品安全问题已引起了广泛关注,人们长期食用残留抗生素的动物性食品可引起抗生素在体内的蓄积,从而造成人体疾病和对该药物的耐药性,损害人体健康^[4-6]。

近年来监测发现禽类和蛋类中有一定程度的四环素类抗生素污染^[7-8],为了解杭州地区鸡肉和鸡蛋中四环素类抗生素残留现状,于2021年对市售的鸡肉和鸡蛋中四环素类抗生素残留量进行调查,并进行膳食暴露风险评估,为政府决策部门制定兽

收稿日期:2022-04-13

基金项目:浙江省海产品健康危害因素关键技术研究重点实验室开放基金(2021A002)

作者简介:王姝婷 女 副主任技师 研究方向为理化分析工作 E-mail:15267467008@163.com

通信作者:龚立科 男 副主任技师 研究方向为理化分析工作 E-mail:lskane@163.com

残污染控制措施提供基础数据。

1 材料与方法

1.1 材料

2021年在杭州地区农贸市场和商店、超市随机采集66份鸡肉样品和71份鸡蛋样品。鸡肉和鸡蛋样品取可食部分在样品均质机中均质,之后分装于洁净的聚丙烯管中,密封冷冻备用,并于采样当年及时完成检测。

1.2 方法

1.2.1 液相色谱-质谱/质谱法检测

按照GB/T 21317—2007《动物源性食品中四环素类兽药残留量检测方法 液相色谱-质谱/质谱法与高效液相色谱法》^[9]中液相色谱-质谱/质谱法检测鸡肉和鸡蛋中的四环素、金霉素、土霉素和强力霉素4种四环素类抗生素。本次监测采用样品加标回收试验作为质控,相同的样品取2份,其中1份加入定量的4种四环素混标,2份同时按相同的分析步骤分析,加标的1份所得的结果减去未加标1份所得的结果,其差值同加入标准物质的理论值之比即为样品加标回收率,加标水平为1.5、5.0、10.0 μg/kg,回收率在87.5%~104.6%之间,4种抗生素的方法检出限均为0.5 μg/kg,各项指标均符合相关检测要求。

1.2.2 结果判定

依据GB 31650—2019《食品安全国家标准 食品中兽药最大残留限量》^[10]中最大残留限量标准判定。

1.2.3 未检出数据处理方法

未检出数据比例≤60%时,所有<LOD的结果用1/2LOD计;当60%≤未检出数据比例≤80%时,至少有25个结果以数量表示时,对所有<LOD的结果,得出2个估计值,0和1/2LOD;当未检出数据比例>80%时,对所有<LOD的结果,得出2个估计值,0和1/2LOD^[11]。

1.2.4 食品安全指数

采用食品安全指数(IFS)法计算四环素类抗生素残留的实际摄入量,评估兽药残留对消费者健康危害程度,公式如下^[12]:

$$EDI_c = R \times F \times E \times P$$

$$IFS_c = \frac{EDI_c \times f}{SI_c \times BW}$$

式中, c 为检测的某种药物; EDI_c 为药物 c 的每日实际摄入量估计值(ng); R 为样品中药物 c 的残留浓度(μg/kg),本调查分别以药物 c 的平均检测值以及最大检测值估计; F 为食品消费量(g/d); E 为食物

的可食用部分因子,取1; P 为食物的加工处理因子,取1; IFS_c 为食品安全指数; SI_c 为药物 c 的安全摄入量(μg/kg),采用每日允许摄入量(Allowable daily intake, ADI)表示; f 为药物 c 安全摄入量的校正因子,若 SI_c 采用ADI表示,取1; BW 为人群平均体重(kg)。

采用IFS法描述兽药残留风险,当 $IFS_c < 1$ 时,表示药物 c 对食品安全的影响很小;当 $IFS_c = 1$ 时,表示药物 c 对食品安全的影响可以接受;当 $IFS_c > 1$ 时,表示药物 c 对食品安全的影响不可接受。

1.3 统计学分析

采用SPSS 19.0软件进行统计分析,不同组别之间的比较采用 χ^2 检验,以 $P < 0.05$ 为差异有统计学意义。

2 结果

2.1 鸡肉和鸡蛋中四环素类抗生素污染总体情况

66份鸡肉中强力霉素检出30份,检出率为45.45%,检出值中最低为0.748 μg/kg,最高为11.7 μg/kg,平均值为(1.87±2.790) μg/kg;土霉素检出1份,检出率为1.52%,检出值为12.9 μg/kg;四环素与金霉素均未检出。71份鸡蛋中强力霉素检出1份,检出率为1.41%,检出值为2.55 μg/kg;土霉素、四环素与金霉素均未检出。GB 31650—2019中规定了家禽肌肉中土霉素、四环素和金霉素(单个或组合)的最高残留限量(Maximum residue limit, MRL)为200 μg/kg,在家禽蛋中土霉素、四环素和金霉素(单个或组合)的MRL为400 μg/kg;产蛋期禽类禁用强力霉素,禽类肌肉中强力霉素MRL为100 μg/kg,此次调查中鸡肉中无超标样品,1份鸡蛋样品中检出强力霉素,超过国家限量标准,超标率为1.41%。鸡肉与鸡蛋中检出项目数据统计如表1所示。

2.2 不同采样地点中四环素类抗生素污染情况

此次调查,1份鸡肉样品中检出土霉素(商店、超市环节采样),1份鸡蛋样品检出强力霉素(农贸市场环节采样),30份鸡肉样品检出强力霉素。66份鸡肉样品在农贸市场(22份)和商店、超市(44份)的检出率分别为36.36%(8/22)和50.00%(22/44),不同采样地点的鸡肉样品中强力霉素的检出率差异无统计学意义($\chi^2=0.427, P=0.514$)。

2.3 食品安全指数

本次调查中,鸡肉中主要检出的四环素类兽药残留为强力霉素,土霉素仅1例;鸡蛋中检出1例强力霉素残留。强力霉素的ADI值为0~3 μg/kg·BW,土霉素的ADI值为0~30 μg/kg·BW。据原国家卫生

表1 鸡肉和鸡蛋中四环素类抗生素含量总体监测结果

Table 1 Monitoring results of tetracycline antibiotics in chicken and eggs

样品种类	抗生素种类	样品份数	检测值/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	平均值/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	P_{95} /($\mu\text{g}/\text{kg}$)	检出份数	检出率/%	超标份数	超标率/%
鸡肉	强力霉素	66	ND~11.7	1.870±2.790	8.87	30	45.45	0	0
	土霉素	66	ND~12.9	0.195±1.590	—	1	1.52	0	0
鸡蛋	强力霉素	71	ND~2.55	0.0359±0.303	—	1	1.41	1	1.41

注:ND代表未检出,一代表无对应数值;按未检出数据比例,对于所有 < LOD的结果,鸡肉中强力霉素按“1/2LOD(0.25 $\mu\text{g}/\text{kg}$)”统计,鸡肉中土霉素和鸡蛋中强力霉素按“0”统计

和计划生育委员会发布的《中国居民营养与慢性病状况报告(2015年)》,成年人的平均体质量为61.8 kg,取该值进行计算。据刘辉等^[13]2010—2011年调查杭州地区居民膳食营养状况,杭州地区居民禽畜肉和蛋类每日的摄入量分别为105.6 g/标准人日和22.3 g/标准人日。经过计算,鸡肉中强力霉素的IFS均值为0.001 07,IFS最大值为0.006 66;鸡肉中土霉素的IFS均值为 1.11×10^{-5} ,IFS最大值为0.000 735;鸡蛋中强力霉素的IFS均值为 4.32×10^{-6} ,IFS最大值为0.000 307,均远低于1。由于鸡肉和鸡蛋中均检出强力霉素,考虑2种食物同时暴露的情况下,计算鸡肉和鸡蛋中强力霉素加和的IFS最大值为0.009 83,同样低于1。

3 讨论

本次所采集的鸡肉样品中,强力霉素和土霉素的检出率分别为45.45%和1.52%,未检出四环素和金霉素;黄希汇等^[14]于2018年在杭州地区采集了17份鸡肉和21份鸡蛋检测相同项目,鸡肉中强力霉素和土霉素的检出率分别为47.1%(8/17)和17.6%(3/17),鸡蛋中未检出四环素类抗生素残留。鸡肉中强力霉素检出率与本调查基本一致,并且不同采样地点中鸡肉样品的强力霉素检出率差异均无统计学意义,说明杭州地区所售鸡肉中强力霉素低含量污染持续存在,而土霉素的检出率在2021年有所下降。

ZHAO等^[15]检测了我国8个省份的养殖场畜禽排泄物中四环素类抗生素残留,在鸡的排泄物中金霉素检出率最高(42.6%),其次为土霉素(27.8%),最低的为强力霉素(9.3%)。可能由于目前市售鸡肉未使用或规范使用这两种抗生素,或者由于这两种抗生素的消化道吸收率低,大部分药物都在休药期内被直接排泄出体外。查阅国家兽药基础数据库(<http://124.126.15.169:8081/cx/>)发现,土霉素、金霉素、四环素、强力霉素休药期分别为5、7、4、28 d,本次调查鸡肉中强力霉素检出率达到45.45%,但检出浓度均远低于国家限量标准,可能是禽类养殖户主要采用此药物预防、治疗疾病并基本做到规范用药。

鸡蛋中强力霉素检出率1.41%,土霉素、四环素与金霉素均未检出。杨欢春等^[3]2017年在宁夏回族自治区的鸡蛋样品中检出强力霉素,检出率为13.5%,与之相比,杭州地区鸡蛋样品中强力霉素污染状况相对较好。杨修镇等^[16]2019年对山东省350批鸡蛋中33种兽药残留进行风险监测,结果提示鸡蛋中四环素类药物偶有检出并呈现不规律性;方兰云等^[17]于2018—2020年调查了宁波市动物源性食品中兽药残留污染状况,结果显示四环素类抗生素在48份鸡蛋中未检出;马青青等^[18]调查河南省540份鸡蛋中四环素类抗生素残留,仅1份样品中检出土霉素,本次监测鸡蛋中四环素类抗生素残留的结果与以上国内同类调查结果基本一致。产蛋期禽类禁用强力霉素,此次调查结果中虽然仅检出1份阳性样品,但也超出国家限量标准为超标样品,超标率为1.41%,说明大部分养殖户们规范了产蛋鸡的用药,遵守了休药期的相关规定,但也偶有违规用药的现象存在。

采用IFS法对鸡肉中强力霉素污染状况做膳食暴露风险评估,经计算,鸡肉中强力霉素的IFS均值为0.001 07,IFS最大值为0.006 66,均远小于1;同时,由于鸡蛋中也检出强力霉素,考虑2种食物同时暴露的情况,计算了鸡肉和鸡蛋中强力霉素加和后IFS最大值为0.009 83,也低于1,说明杭州地区所售鸡肉和鸡蛋中强力霉素的污染程度对食品安全影响很小。在计算IFS时,食品消费量 F 所采用的是杭州地区居民每日所有禽畜肉的摄入量,虽然对鸡肉的实际摄入量有所放大,但未完全考虑到其他禽畜肉来源这一不确定因素,此类调查监测可在今后继续完善。调查结果显示鸡肉和鸡蛋中四环素类抗生素的食品安全风险程度很低,尽管如此,低残留的抗生素仍有可能使长期暴露人群产生耐药性进而影响人体健康。本次监测反映了杭州地区禽类和禽蛋中四环素类抗生素的残留现状,对今后开展兽药残留监测和预警工作,更好地保障食品安全和消费者健康具有积极的作用。

参考文献

[1] 董高领,牛志强,刘利晓.高效液相色谱法检测饲料中四环

- 素类药物含量研究进展[J]. 畜牧与饲料科学, 2019, 40(1): 33-35.
- DONG G L, NIU Z Q, LIU L X. Research progress on detection methods of tetracyclines in feed stuff by high-performance liquid chromatography[J]. *Animal Husbandry and Feed Science*, 2019, 40(1): 33-35.
- [2] 李靓, 侯玉泽, 张改平, 等. 动物源性食品中四环素类抗生素残留及检测[J]. 中国公共卫生, 2013, 29(2): 302-305.
- LI L, HOU Y Z, ZHANG G P, et al. Residue and detection of tetracycline antibiotics in animal-derived foods[J]. *Chinese Journal of Public Health*, 2013, 29(2): 302-305.
- [3] 杨欢春, 刘峰, 徐飞, 等. 2016年-2017年宁夏市售鸡蛋和鸡肉中四环素类抗生素残留监测分析[J]. 中国卫生检验杂志, 2018, 28(9): 1117-1119.
- YANG H C, LIU F, XU F, et al. Analysis of detection results of tetracycline antibiotics residue in eggs and chicken in Ningxia during 2016-2017 [J]. *Chinese Journal of Health Laboratory Technology*, 2018, 28(9): 1117-1119.
- [4] 王敏娟, 胡佳薇, 田丽, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法同时测定鸡蛋中21种喹诺酮及四环素类抗生素残留[J]. 中国卫生检验杂志, 2017, 27(4): 473-476.
- WANG M J, HU J W, TIAN L, et al. Simultaneous determination of quinolone and tetracycline residues in eggs by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Chinese Journal of Health Laboratory Technology*, 2017, 27(4): 473-476.
- [5] 李晓晶, 于鸿, 甘平胜, 等. 广州市居民动物性膳食中喹诺酮和四环素类抗生素残留暴露评估[J]. 现代预防医学, 2016, 43(24): 4447-4451.
- LI X J, YU H, GAN P S, et al. Assessment of exposure of Guangdong residents to quinolones and tetracycline antibiotics in animal dietary [J]. *Modern Preventive Medicine*, 2016, 43(24): 4447-4451.
- [6] 段留德. 家禽用药残留对人体的危害[J]. 家禽科学, 2014(11): 31-32.
- DUAN L D. Harm of drug residues in poultry to human body[J]. *Poultry Science*, 2014(11): 31-32.
- [7] 董峰光, 王朝霞, 宫春波, 等. 烟台市806份动物源性食品中违禁药物及兽药残留检测[J]. 现代预防医学, 2018, 45(17): 3118-3121.
- DONG F G, WANG Z X, GONG C B, et al. Detection of forbidden drug and veterinary drug residue in 806 copies animal derived food, Yantai [J]. *Modern Preventive Medicine*, 2018, 45(17): 3118-3121.
- [8] 张涛, 李静娜, 龙彩虹, 等. 衡阳市售动物源性食品中四环素类抗生素残留调查[J]. 现代预防医学, 2017, 44(7): 1194-1197.
- ZHANG T, LI J N, LONG C H, et al. Tetracycline antibiotics residue in animal-origin food in Hengyang [J]. *Modern Preventive Medicine*, 2017, 44(7): 1194-1197.
- [9] 国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. 动物源性食品中四环素类兽药残留量检测方法液相色谱-质谱/质谱法与高效液相色谱法: GB/T 21317—2007[S]. 北京: 中国标准出版社, 2008.
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, Standardization Administration of the People's Republic of China. Determination of tetracyclines residues in food of animal origin—LC-MS/MS method and HPLC method: GB/T 21317—2007[S]. Beijing: Standards Press of China, 2008.
- [10] 中华人民共和国农业农村部, 国家卫生健康委员会, 国家市场监督管理总局. 食品安全国家标准 食品中兽药最大残留限量: GB/T 31650—2019[S]. 北京: 中国标准出版社, 2020.
- Ministry of Agriculture and Rural Affairs of the People's Republic of China, National Health Commission, State Administration for Market Regulation. National food safety standard-Maximum residue limits for veterinary drugs in foods: GB/T 31650—2019 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2020.
- [11] 王绪卿, 吴永宁, 陈君石. 食品污染监测低水平数据处理问题[J]. 中华预防医学杂志, 2002, 36(4): 278-279.
- WANG X Q, WU Y N, CHEN J S. Low-level data processing of food pollution monitoring [J]. *Chinese Journal of Preventive Medicine*, 2002, 36(4): 278-279.
- [12] 金征宇. 食品安全导论[M]. 北京: 化学工业出版社, 2005: 255-257.
- JIN Z Y. Introduction to food safety [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2005: 255-257.
- [13] 刘辉, 黄春萍, 王玲莉. 杭州地区居民膳食营养状况调查[J]. 浙江预防医学, 2015, 27(12): 1221-1225.
- LIU H, HUANG C P, WANG L L. An analysis on the dietary nutrition status among residents in Hangzhou [J]. *Zhejiang Journal of Preventive Medicine*, 2015, 27(12): 1221-1225.
- [14] 黄希汇, 刘少颖, 金铨, 等. 杭州城区动物性食品中四环素类抗生素残留调查[J]. 预防医学, 2019, 31(7): 735-736.
- HUANG X H, LIU S Y, JIN Q, et al. Investigation on residues of tetracyclines in animal food in urban areas of Hangzhou [J]. *Preventive Medicine*, 2019, 31(7): 735-736.
- [15] ZHAO L, DONG Y H, WANG H. Residues of veterinary antibiotics in manures from feedlot livestock in eight provinces of China [J]. *Science of the Total Environment*, 2010, 408(5): 1069-1075.
- [16] 杨修镇, 李有志, 薄永恒, 等. 2019年全省鸡蛋风险监测结果给予的启示[J]. 山东畜牧兽医, 2020, 41(3): 58-60.
- YANG X Z, LI Y Z, BO Y H, et al. Enlightenment from the results of egg risk monitoring in the whole province in 2019 [J]. *Shandong Journal of Animal Science and Veterinary Medicine*, 2020, 41(3): 58-60.
- [17] 方兰云, 潘胜东, 陆蓓蓓, 等. 2018—2020年宁波市动物源性食品中喹诺酮和四环素类兽药残留污染状况及暴露评估[J]. 卫生研究, 2022, 51(1): 113-117.
- FANG L Y, PAN S D, LU B B, et al. Contamination status and the health risk evaluation of dietary exposure of quinolone and tetracycline antibiotics in animal derived foods in Ningbo City from 2018 to 2020 [J]. *Journal of Hygiene Research*, 2022, 51(1): 113-117.
- [18] 马青青, 卢素格, 刘红丽, 等. 2021年河南省鸡蛋中28种兽药残留状况及膳食暴露风险评估[J]. 河南预防医学杂志, 2022, 33(2): 108-111.
- MA Q Q, LU S G, LIU H L, et al. Residues and dietary exposure risk assessment of 28 veterinary drugs in eggs in Henan Province in 2021 [J]. *Henan Journal of Preventive Medicine*, 2022, 33(2): 108-111.