

## 调查研究

## 杭州市富阳区本地地产大米中重金属含量水平及其膳食暴露评估

洪宇伟,李海鹏,谢鑫鑫,钱小平

(杭州市富阳区疾病预防控制中心,浙江 杭州 311400)

**摘要:**目的 了解杭州市富阳区本地地产大米中重金属铅、镉、总铬、总砷和无机砷的含量水平,评估消费本地地产大米对健康的潜在风险,为富阳区的粮食安全提供决策依据。方法 2018—2020年,在富阳辖区8个乡镇街道内采集成熟期水稻450份,同时采集超市销售大米样品50份作对照样品。样品采用优化的微波消解条件消化后,根据国家标准对4种重金属元素含量进行检测,计算大米中重金属的暴露量,并采用安全限值(MOS)或暴露边界值(MOE)法进行风险评估。结果 富阳区本地地产大米样品的铅、镉、总铬和总砷的平均值含量水平分别为38.0、180、83.8、77.2  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。其中,本地地产大米中铅、总铬和无机砷的合格率为100%,而镉的超标率为26%,对照组市售大米的合格率为100%。铅、镉、铬和砷4种重金属元素的暴露对居民健康风险均可接受,风险高低表现为 $\text{Cd}>\text{Cr}>\text{Pb}>\text{As}$ 。结论 根据膳食风险评估结果显示,居民消费富阳区本地地产大米暴露4种重金属而引起的健康风险较低。

**关键词:**富阳大米;重金属;暴露;风险评估

中图分类号:R155

文献标识码:A

文章编号:1004-8456(2022)03-0437-07

DOI:10.13590/j.cjfh.2022.03.008

### Occurrence and exposure assessment of heavy metals in local-planted rice collected from Fuyang district of Hangzhou

HONG Yuwei, LI Haipeng, XIE Xinxin, QIAN Xiaoping

(Fuyang District Center for Disease Control and Prevention, Zhejiang Hangzhou 311400, China)

**Abstract: Objective** To provide theoretical guidance and decision-making basis for food security in Fuyang district, the levels of lead, cadmium, chromium and arsenic in native rice in Fuyang district in Hangzhou were studied, and the potential risk of eating native rice to human health was evaluated. **Methods** 450 representative and mature rice samples were collected from 8 areas in Fuyang from 2018 to 2020. The other 50 samples from the supermarket were used as the control group. The pretreatment conditions of microwave digestion were optimized and then the exposure amount of heavy metals were detected according to Chinese national standards. And the risk assessment was carried out by MOS or MOE method. **Results** The average values of lead, cadmium, chromium and arsenic in native rice samples were 38.0, 180, 83.8, 77.2  $\mu\text{g}/\text{k}$ , respectively. The qualified rate of lead, chromium and inorganic arsenic in native rice was 100%. The over-limit rate of cadmium in native rice was 26%, and the qualified rate of commercial rice in control group was 100%. The exposure of lead, cadmium, chromium and arsenic to the health risk of residents were acceptable, and the risk level was  $\text{Cd}>\text{Cr}>\text{Pb}>\text{As}$ . **Conclusion** According to the results of dietary risk assessment, the health risk caused by the exposure of four heavy metals to the native rice consumed in Fuyang district is relatively low.

**Key words:** Fuyang rice; heavy metal; exposure; risk assessment

世界上约有75%的人口以大米作为主要粮食,而我国是水稻的第一种植大国,同时也是大米消费的主要国家之一<sup>[1-3]</sup>。大米富含多种人体必需的营养元素和矿物质,作为三餐主食,深受国人喜爱,直接影响国人的身体健康。随着我国经济的飞速发

展和城镇化的加速,环境污染在所难免,尤其土壤和水体的重金属污染<sup>[4-5]</sup>。而常见的重金属污染主要包括铅、镉、铬、砷等<sup>[6-10]</sup>。其中镉是一种毒性很强的重金属元素,进入人体后,会影响钙、磷等元素的吸收和代谢,进而影响人体骨细胞的形成,导致骨质疏松、变形和疼痛,并诱发癌变造成内脏系统紊乱<sup>[11]</sup>。铅可以对人体的消化系统、神经系统、血液系统等造成严重损害<sup>[12]</sup>。铬、砷可以诱发癌症,已经被国际癌症研究机构(International Agency for Research on Cancer, IARC)认定为人类致癌物<sup>[13-14]</sup>。

收稿日期:2021-10-25

作者简介:洪宇伟 男 初级理化检验师 研究方向为理化检验工作 E-mail:997978191@qq.com

通信作者:钱小平 男 副主任技师 研究方向为理化和病原微生物检验技术 E-mail:ffyyccddcc@163.com

另外水稻又是一种强吸收重金属元素的粮食作物,可以对一些重金属吸收富集,最终通过食物链进入人体,影响人体健康<sup>[15-17]</sup>。因此大米中的重金属元素的检测和控制显得尤为重要<sup>[18]</sup>。

富阳区,古称“富春”,杭州市市辖区,其特殊的地理位置和优越的自然环境使其很适合水稻生长,其各乡镇街道都有水稻种植,稻田占耕地面积比重大。同时富阳还素有“中国造纸之乡”、“中国白板纸基地”等称号,辖区内厂矿企业也比较多,主要分布于富春街道、场口镇等乡镇街道<sup>[19-20]</sup>。尽管近几年区政府大刀阔斧地改革,搬迁了造纸厂,关停了小冶炼作坊等,加速淘汰了一些重污染的企业,但是土壤的重金属污染以其半衰期长不易降解的特性仍不容被忽视<sup>[21-22]</sup>。近几年,通过对富阳区辖区内耕地土壤中重金属含量的调查研究,发现存在一定耕地土壤重金属污染的现象,严重威胁着富阳区居民的健康<sup>[23]</sup>。

为了进一步了解富阳区本地产大米的安全状况,本文对富阳区本地产大米中的铅、镉、铬、砷元素含量进行调查研究,选取8个乡镇街道水稻产区的稻米作研究对象以了解重金属元素的污染情况并对其进行暴露评估,旨在为富阳区的粮食安全提供决策依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 主要仪器与试剂

MARS6 微波消解仪(美国 CEM 公司);PE-900 石墨炉原子吸收光谱仪(美国 PE 公司);AFS-9230 原子荧光分光光度计(北京吉天仪器有限公司);液相色谱-电感耦合等离子质谱仪(Waters e2695-Agilent ICP-MS/MS);AB-204N 电子天平(瑞士 Mettler Toledo 公司);SIGAM 4-16KS 离心机(德国 Sigma 公司)。

69% 硝酸(优级纯,德国默克公司);30% 双氧水(优级纯,国药集团);1 mg/mL 铅(Pb)标准溶液(GSB 04-1742-2004 国家有色金属);1 mg/mL 镉(Cd)标准溶液(GSB 04-1721-2004 国家有色金属);1 mg/mL 铬(Cr)标准溶液(GSB 04-1723-2004 国家有色金属);1 mg/mL 砷(As)标准溶液(GSB 07-3171-2014 国家有色金属);大米粉标准物质(GBW(E) 100357)。

### 1.2 样品来源

主要采集 2018—2020 年成熟期的水稻样品,时间为 9 月末到 10 月初。为充分考虑样品的代表性,所采集区域包括街道 A、街道 B、街道 C 等共 8 个乡镇街道内的本地产水稻样品,其中街道 A 和街

道 D 各 75 份,其余乡镇街道各 50 份,总计 450 份。另外采集富阳区超市销售的大米样品 50 份作对照样品。水稻样品采集后,先将样品自然晾晒至干燥状态,再用小型碾米机对稻谷进行碾米,获得 500 g 左右的精米。将得到的精米粉碎装入聚乙烯塑料袋备用。

## 1.3 实验方法

### 1.3.1 测定方法及判定标准

铅元素、镉元素和铬元素的测定方法参考 GB5009.12—2017《食品中铅的测定》中第一法石墨炉原子吸收光谱法、GB5009.15—2014《食品中镉的测定》的石墨炉原子吸收光谱法和 GB5009.123—2014《食品中铬的测定》的石墨炉原子吸收光谱法。砷元素的测定方法参考 GB5009.11—2014《食品中砷的测定》中第一篇总砷测定的第二法氢化物发生原子荧光光谱法和第二篇无机砷测定的第一法液相色谱-电感耦合等离子质谱法。

检测结果按 GB2726—2017《食品安全国家标准 食品中污染物限量》规定的铅、镉、铬、无机砷限量标准判定。

### 1.3.2 样品前处理

称取 0.2~1.0 g 大米粉标准物质于聚四氟乙烯微波消解管中,分别加入浓硝酸和双氧水,并放入 MARS6 微波消解仪中,以表 1 升温程序进行微波消解<sup>[24]</sup>,消解结束后,等待消解管冷却到室温,取出消解管,在 145 °C 温度下进行赶酸,待消解液体积小于 0.5 mL,将消解液转移至 10 mL 容量瓶中,用 1% 的硝酸溶液定容至 10 mL,供 GFAAS、HGAFS、HPLC-ICP-MS/MS 测定铅、镉、铬、砷元素含量。

表 1 大米粉标准物质微波消解程序

Table 1 The microwave digestion procedure of the rice standard materials

时间/min	温度/°C	功率/W	保持时间/min
0	室温	1 600	—
5	120	1 600	5
10	140	1 600	5
15	170	1 600	5
25	180	1 600	10

## 1.4 暴露评估

### 1.4.1 评估依据

#### 1.4.1.1 铅元素

联合国粮农组织/世界卫生组织食品添加剂联合专家委员会(Jion FAO/WHO Expert Committee on Food, JECFA) 2010 年取消了铅的暂定每周可耐受摄入量(Provisional tolerable weekly intake, PTWI) 25 μg/kg·BW, 未指定新的健康指导值。但 JECFA 通过评估分析相应的毒理学资料后,给出了以成人

心血管效应为指标的基准剂量的 95% 置信区间下限值 (Benchmark dose limit, BMDL)  $1.3 \mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$  (相当于每月  $39 \mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$ )<sup>[12]</sup>。本文以此基准剂量可信区间下限值作为评估铅暴露的判断指标。

#### 1.4.1.2 镉元素

JECFA 2011 年制定的食品中的镉的暂定每月可耐受摄入量 (Provisional tolerable monthly intake, PTMI)  $25 \mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$  作为镉的健康指导值<sup>[25]</sup>。

#### 1.4.1.3 铬元素

JECFA 2011 年制定的食品中的铬的 PTMI  $6.70 \mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$  (相当于每月  $28.71 \mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$ ) 作为铬的健康指导值<sup>[26]</sup>。

#### 1.4.1.4 砷元素

JECFA 2010 年取消了无机砷的 PTWI  $15 \mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$ 。但 JECFA 通过评估分析,给出了以无机砷导致人类肺癌为终点的基准剂量的 95% CI 下限值  $3 \mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$  (相当于每月  $90 \mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$ )。本文以此基准剂量可信区间下限值作为评估砷暴露的判断依据<sup>[13]</sup>。

铬在自然环境中主要以三价铬和六价铬两种形态存在,三价铬是生物必需的营养元素,而六价铬却被国际癌症研究机构列为一类致癌物,两者对人体健康影响处于两个极端<sup>[27]</sup>。砷又有无机砷和有机砷之分,无机砷的危害更大<sup>[28]</sup>。尽管铬有价态之分,砷有无机砷和有机砷之分,且不同形态危害不同,但是为了更好更方便地对铬、砷元素进行暴露评估,本文根据风险评估保守原则决定采用总铬和总砷的含量平均值进行暴露评估<sup>[29]</sup>。

#### 1.4.2 评估方法

本文暴露评估采用点评估法<sup>[30]</sup>。根据富阳区本地大米中重金属的平均含量和本地居民的平均消费量,计算富阳区本地大米中重金属的暴露量。本文采用安全限值 (Margin of safety, MOS) 或暴露边界值 (Margin of exposure, MOE) 的方法对本地居民消费的本地大米中铅、镉、铬和砷 4 种重金属元素的暴露进行风险评估。安全限值 MOS 定义为健康指导值与居民膳食暴露量的比值。当  $\text{MOS} \geq 1$  时,表示暴露对居民健康风险可以接受,数值越大,风险越小;当  $\text{MOS} < 1$  时,表示暴露对居民健康存在不可接受的较大风险,数值越小,风险越大。暴露边界值 MOE 定义为基准剂量可信区间下限值与居民膳食暴露量的比值。一般认为比值  $> 100$  时不存在暴露风险。MOE 越小,该物质致癌危险性越大,反之越小。居民体质量参考《中国人群暴露参数手册(成人卷)》<sup>[31]</sup>,取值  $60.6 \text{ kg}$ 。居民每日消费大米的平均消费量参考陈江等<sup>[32]</sup>浙江省城市居民

膳食营养摄入状况研究,取值  $0.2808 \text{ kg}/\text{人}\cdot\text{d}$ 。假设消费的本地大米均为统计时的单一特定食品,其他消费的食品均不含重金属。另外,4 种重金属的健康指导值不一致,有按日、周、月计算。因此,在计算时本文采用按月计算,在每日基础上乘以 30 作为月消费量。

$$\text{慢性暴露点评估模型: } EXP_c = \sum_{n=1}^p \frac{x_k C_k}{BW} \times f \times 30$$

$\text{MOS} = \text{PTMI}/\text{膳食暴露量}$ ;  $\text{MOE} = \text{BMDL}/\text{膳食暴露量}$

式中,  $EXP_c$  为居民每月膳食暴露量 ( $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}\cdot\text{月}$ );  $x_k$  为第  $k$  种食品的居民消费量 ( $\text{kg}$ );  $C_k$  为第  $k$  种食品中某一金属的平均含量 ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ );  $P$  为某 1 天中消费食品种类数目;  $BW$  为被评估人群的平均体质量 ( $\text{kg}$ );  $f$  为加工因子,本文未考虑食品加工前后重金属含量变化,取值 1。

#### 1.5 统计学分析

本文采用的膳食消费量数据来自《浙江省城市居民膳食营养摄入状况研究》<sup>[32]</sup>,研究对象为成年人。检测结果以平行样测定值的平均值表示,原始数据采用 SPSS 21.0 和 Excel 2017 进行统计分析。检测数据低于检出限的样品按检出限的 1/2 纳入统计。以  $P < 0.05$  为差异有统计学意义。

## 2 结果与分析

### 2.1 消解条件优化

选择  $5 \text{ mL HNO}_3$ 、 $5 \text{ mL HNO}_3 + 1 \text{ mL H}_2\text{O}_2$ 、 $5 \text{ mL HNO}_3 + 3 \text{ mL H}_2\text{O}_2$ 、 $3 \text{ mL HNO}_3 + 3 \text{ mL H}_2\text{O}_2$  四种不同的消解体系对大米粉标准物质进行测定。测定结果见表 2。从实验结果中发现,采用  $5 \text{ mL HNO}_3 + 1 \text{ mL H}_2\text{O}_2$  的消解体系时,测得 4 种重金属元素的含量均在标准范围内,且回收率为  $97.3\% \sim 102.0\%$ 。因此, $5 \text{ mL HNO}_3 + 1 \text{ mL H}_2\text{O}_2$  是最佳消解体系,确定将  $5 \text{ mL HNO}_3 + 1 \text{ mL H}_2\text{O}_2$  作为测定大米样品的消解条件。

### 2.2 线性范围及检出限

运用仪器软件绘制标准曲线,测定 11 次样品空白所得的标准偏差的 3 倍为对应元素的检出限。同时为保证测定结果准确可靠,每批次检测都对大米粉成分分析标准物质中铅、镉、总铬、总砷含量进行检测,并与标准数值比较。结果显示, Pb 方程为  $y = 0.00231x + 8.9912 \times 10^{-5}$ ,  $r^2 \geq 0.9995$ , 检出限为  $1.07 \mu\text{g}/\text{kg}$ ; Cd 方程为  $y = 0.0487x + 4.0302 \times 10^{-5}$ ,  $r^2 \geq 0.9995$ , 检出限为  $1.05 \mu\text{g}/\text{kg}$ ; Cr 方程为  $y = 0.0107x + 3.0814 \times 10^{-5}$ ,  $r^2 \geq 0.9995$ , 检出限为  $2.71 \mu\text{g}/\text{kg}$ ; As 方程为  $y = 0.00792x - 0.00228$ ,

表2 不同消解体系下大米标准物质的测定结果

Table 2 The measured results of the rice standard materials under different digestion system

元素	标准值/(mg/kg)	5 mL HNO <sub>3</sub>		5 mL HNO <sub>3</sub> +1 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>		5 mL HNO <sub>3</sub> +3 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>		3 mL HNO <sub>3</sub> +3 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	
		测定值/(mg/kg)	回收率/%	测定值/(mg/kg)	回收率/%	测定值/(mg/kg)	回收率/%	测定值/(mg/kg)	回收率/%
Pb	0.11±0.02	0.0892	81.1	0.111	100.9	0.112	101.8	0.0739	67.2
Cd	2.16±0.06	1.81	83.8	2.15	99.5	2.13	98.6	1.73	80.0
Cr	0.063±0.007	0.0523	87.2	0.0612	102.0	0.0623	103.8	0.0433	72.2
As	0.105±0.008	0.0628	62.8	0.0973	97.3	0.0952	95.2	0.0511	51.1

$r^2 \geq 0.9995$ , 检出限为  $1.61 \mu\text{g}/\text{kg}$ 。线性关系良好, 符合仪器要求标准。并按要求对大米粉成分分析标准物质中铅、镉、总铬、总砷含量进行检测, 分别为  $0.111$ 、 $2.15$ 、 $0.0612$ 、 $0.0973 \text{ mg}/\text{kg}$ , 与标准数值 (Pb:  $0.11 \pm 0.02 \text{ mg}/\text{kg}$ , Cd:  $2.16 \pm 0.06 \text{ mg}/\text{kg}$ , Cr:  $0.063 \pm 0.007 \text{ mg}/\text{kg}$ , As:  $0.105 \pm 0.008 \text{ mg}/\text{kg}$ ) 比较, 均符合 GB/T 27404—2008《实验室质量控制规范食品理化检测》的技术要求。

### 2.3 富阳区本地地产大米中铅、镉、总铬、总砷的含量分析

按照 1.3.2 所优化的样品前处理方法和 1.3.1 所述的测定方法对富阳区 8 个乡镇街道内本地地产的 450 份大米样品和辖区超市内销售的 50 份大米样品中铅、镉、铬和砷 4 种重金属元素进行检测, 检测结果如表 3 所示。

目前, 谷物及其制品的重金属判定标准为 GB 2762—2017《食品安全国家标准 食品中污染物限

量》, 其规定的标准限值: Pb、Cd、无机 As:  $\leq 0.2 \text{ mg}/\text{kg}$ , Cr:  $\leq 1.0 \text{ mg}/\text{kg}$ , 而对于制定无机砷限量的食品可先测定其总砷, 当总砷水平不超过无机砷限量时, 不必测定无机砷。以此为依据对各元素进行整体性评价, 由表 3 可知富阳区 8 个乡镇街道内本地地产的 450 份大米样品中铅、铬含量水平较低, 含量未超标, 合格率为 100%; 镉的含量水平较高, 镉的超标率为 26%; 而 450 份样品中有 6 份的总砷含量超过  $0.2 \text{ mg}/\text{kg}$ , 分别为  $0.210$ 、 $0.239$ 、 $0.281$ 、 $0.284$ 、 $0.217$  和  $0.235 \text{ mg}/\text{kg}$ , 采用 GB 5009.11—2014 的方法测定其无机砷含量, 分别为  $0.0513$ 、 $0.0674$ 、 $0.0771$ 、 $0.0727$ 、 $0.0542$  和  $0.0611 \text{ mg}/\text{kg}$ , 因此 450 份大米中无机砷含量均未超标, 合格率为 100%。富阳区辖区内超市售卖的 50 份大米中铅、镉、总铬、总砷含量都未超标, 合格率为 100%。本地地产大米样品中铅、镉、总铬、总砷的含量水平平均值分别为  $38.0$ 、 $180$ 、 $83.8$ 、 $77.2 \mu\text{g}/\text{kg}$ 。实验结果表明富

表3 富阳区本地地产及市售大米中铅、镉、总铬、总砷的平均含量及范围

Table 3 The content of lead, cadmium, total chromium and total arsenic in residential rice in Fuyang district

区域	样品数量/份	铅含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )						镉含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )					
		平均数±标准差	中位数	P95	监测范围	变异系数/%	超标率/%	平均数±标准差	中位数	P95	监测范围	变异系数/%	超标率/%
街道A	75	51.4±35.0	40.6	140	19.0~193	68.0	0	84.2±59.4	68.9	229	20.1~298	70.6	2.67
街道B	50	41.0±20.5	34.3	87.2	10.4~97.3	50.0	0	105±47.8	108	186	16.2~261	45.6	2.00
街道C	50	50.1±28.2	43.3	114	19.0~119	56.3	0	65.7±43.3	44.8	151	14.6~179	65.9	0
街道D	50	39.2±34.0	25.4	127	ND~187	86.7	0	288±267*	196	859	ND~1.07×10 <sup>3</sup>	96.2	50.0
街道E	75	38.9±28.1	28.3	109	18.0~148	72.2	0	439±290*	368	997	65.6~1.16×10 <sup>3</sup>	66.1	72.0
街道F	50	46.7±30.6	36.1	109	ND~148	65.5	0	371±304*	304	867	28.2~1.79×10 <sup>3</sup>	82.0	70.0
街道G	50	16.9±20.0	5.27	45.6	ND~110	118	0	45.6±35.7	35.2	130	ND~136	78.4	0
街道H	50	19.9±29.1	5.27	75.5	ND~166	146	0	50.7±34.3	39.6	125	11.1~139	67.7	0
总计	450	38.0±30.9	35.1	102	ND~193	81.3	0	180±232	84.9	667	ND~1.79×10 <sup>3</sup>	129	26.0
市售样品	50	12.4±19.2	2.50	44.8	ND~110	155	0	28.1±29.8	13.8	86.9	ND~121	106	0

  

区域	样品数量/份	总铬含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )						总砷含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )					
		平均数±标准差	中位数	P95	监测范围	变异系数/%	超标率/%	平均数±标准差	中位数	P95	监测范围	变异系数/%	超标率/%
街道A	75	87.7±96.9	51.4	326	15.2~351	110	0	64.9±44.5	50.3	170	ND~193	68.5	0
街道B	50	118±76.1	102	316	ND~379	64.2	0	52.0±36.8	46.8	108	ND~116	70.8	0
街道C	50	73.6±94.0	34.7	315	ND~351	128	0	69.1±63.2	51.6	258	ND~284	91.4	0
街道D	50	110±105	52.0	302	ND~336	95.2	0	96.6±35.3	102	143	ND~149	36.5	0
街道E	75	113±84.6	116	298	ND~378	74.8	0	118±45.4	128	195	10.7~217	38.3	0
街道F	50	94.7±81.0	83.2	310	15.4~364	85.5	0	120±36.6	114	203	23.5~235	30.4	0
街道G	50	47.5±30.1	37.5	97.2	11.3~139	63.4	0	47.8±33.2	40.0	115	ND~136	69.3	0
街道H	50	24.9±20.8	18.7	89.2	10.3~100	83.6	0	48.5±34.2	37.9	125	ND~160	70.6	0
总计	450	83.8±84.4	45.3	288	ND~379	101	0	77.2±50.6	70.5	152	ND~284	65.5	0
市售样品	50	30.4±28.5	20.7	95.9	ND~99.5	93.6	0	51.3±32.4	53.9	110	ND~137	63.2	0

注: \*表示有显著性差异( $P < 0.05$ ); ND表示未检出

阳区本地地产大米以及辖区内市售大米中铅、总铬、无机砷含量均低于国家标准限值,而镉的含量水平较高,450份样品中有117份超过国家标准限值。通过Kruskal-Wallis *H* 秩和检验分析,结果显示街道D、街道E和街道F三个地区的镉元素含量显著高于其他5个地区,两两比较差异具有统计学意义( $P<0.05$ )。

#### 2.4 富阳区本地地产大米铅、镉、铬、砷的暴露评估

根据富阳区本地地产大米重金属的平均值含量水平、慢性暴露点评估模型计算公式以及MOS或MOE评价方法,可以计算得到重金属暴露量和MOS或MOE,如表4所示。

表4 富阳区本地居民消费本地地产大米中4种重金属的每月暴露量

项目	铅	镉	总铬	总砷
PTMI或BMDL <sub>01</sub> ( $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$ )	39	25	28.71	90
平均暴露量( $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$ )	5.28	25.0	11.6	10.7
MOS <sub>1</sub> 或MOE <sub>1</sub>	7.38	1.00	2.46	8.39
含高浓度水平的样本(P95)的暴露量	21.3	40.0	92.7	14.2
MOS <sub>2</sub> 或MOE <sub>2</sub>	1.85	0.624	0.310	6.35

注:MOS<sub>1</sub>或MOE<sub>1</sub>对应平均暴露量;MOS<sub>2</sub>或MOE<sub>2</sub>对应含高浓度水平的样本(P95)的暴露量;BMDL<sub>01</sub>为诱发1%肿瘤发生率的95%可信区间的下限值

由表4可知富阳区本地居民消费本地地产大米中铅、镉、铬、砷的月平均暴露量均小于或等于JECFA制定的PTMI或BMDL<sub>01</sub>值。如果按照平均暴露量来计算MOS<sub>1</sub>或MOE<sub>1</sub>,铅、镉、铬、砷4种重金属元素的暴露对居民健康风险均可接受,风险高低表现为Cd>Cr>Pb>As。而按照含高浓度水平的大米样品(P95)的暴露量来计算MOS<sub>2</sub>或MOE<sub>2</sub>,则铅、砷2种重金属元素的暴露对居民健康风险可接受,镉、铬2种重金属元素有较大健康风险。但是按照含高浓度水平的大米样品(P95)的暴露量来计算MOS<sub>2</sub>或MOE<sub>2</sub>时,采用了较为极端的假设,实际消费者不可能长期只食用富阳区本地地产大米,所以实际风险不会这么高。

### 3 讨论

随着工业化和城镇化的快速发展,重金属污染问题越来越严重。通过健康风险评估能提前预警大米重金属污染对居民健康造成的威胁。本文检测结果显示,铅、镉、铬、砷4种重金属元素在所有监测地区的大米中均有检出,但有不同程度的含量水平,且不同种类及不同元素的污染水平差异较大。

依据GB2762—2017《食品安全国家标准 食品中污染物限量》对各元素进行整体性评价,富阳区8个乡镇街道内本地地产的450份大米样品中铅、铬含

量水平较低,含量未超标,合格率为100%;镉的含量水平较高,超标率为26%;有6份样品的总砷含量超过限量标准,但其无机砷含量均未超标。富阳区辖区内超市售卖的50份大米中铅、镉、总铬、总砷含量都未超标,合格率为100%。本地地产大米样品中铅、镉、总铬、总砷的含量水平平均值分别为38.0、180、83.8、77.2  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。因此,实验结果显示富阳区本地地产大米中铅、总铬、无机砷含量均低于国家标准限值,而镉的含量水平较高,450份样品中有117份超过国家标准限值。通过Kruskal-Wallis *H* 秩和检验分析,发现街道D、街道E和街道F3个地区的镉元素含量显著高于其他5个地区,两两比较差异具有统计学意义( $P<0.05$ )。

目前,对非遗传毒性物质和非致癌物(如镉、铬)的危险性评估,通常是在NOAEL的基础上再加上安全系数,计算出每天容许摄入量(Acceptable daily intake, ADI)或PTWI,用ADI或PTWI与人群实际摄入水平进行比较,该比值为MOS,就可对该物质对人群的危险性进行评估。而对遗传毒性致癌物(如铅、砷),以往的危险性评估认为应尽可能避免接触这类物质,既没有考虑这类物质摄入量和致癌作用强度的关系,也没有考虑可接受的耐受剂量,因此不能以此来确定监管污染物的重点和预防措施,但又非常需要评估者提供不同摄入量可能造成的不同健康危险度的信息。因此,国际上在对这类物质进行危险性评估时,建议用剂量反应模型BMDL和MOE进行评估。BMDL<sub>01</sub>、BMDL<sub>05</sub>、BMDL<sub>10</sub>分别为诱发1%、5%或10%肿瘤发生率的95%可信区间的下限值,BMDL除以人群估计摄入量,则为MOE。MOE越小,该物质致癌危险性也就越大,反之就越小。本文暴露评估采用慢性暴露点评估法,以JECFA制定的健康指导值每月可耐受摄入量PTMI或基准剂量BMDL为评估依据,根据富阳区本地地产大米中重金属的平均暴露量,用MOS或MOE进行风险评估。膳食风险评估结果显示,富阳区本地地产大米中铅、镉、铬、砷4种重金属元素的平均暴露水平对居民健康风险均可接受,该评估结果与杭州、宁波、慈溪等长三角城市膳食评估结果基本一致<sup>[33-35]</sup>。但是,需要注意的是对于作为有毒金属的铅,不存在对健康没有严重影响的阈值。即使铅的低水平暴露也可能导致神经毒性,即对神经系统和大脑发育产生损害,特别是儿童<sup>[12]</sup>。因此,本文风险评估只针对成年人群,而忽略儿童这一特殊人群,存在低估风险的情况,需进一步划分人群进行评估。同时考虑到高食品消费人群如P95消费量人群,本文采用极端假设的情况进行评估。

假设居民长期只食用富阳区本地地产大米,则膳食风险评估结果显示镉、铬两种重金属元素存在较大健康风险。但是铬在自然环境中主要以三价铬和六价铬两种形态存在<sup>[27]</sup>,三价铬是生物必需的营养元素,而六价铬却被国际癌症研究机构列为一级致癌物<sup>[14]</sup>,两者对人体健康影响处于两个极端。因此存在铬的人群风险被高估的情况,需进一步区分不同价态的铬含量,做出更严谨的评估。另外在实际情况下,居民的膳食结构除了包括主食大米以外,还包括其他粮谷类、蔬菜类、畜禽肉类、鱼虾类、蛋类、奶类等动植物食品以及个体差异的真实摄入量,不同产地的大米等因素都需要综合考虑。根据陈江等<sup>[32]</sup>的研究可知浙江省居民膳食主体是谷类等植物性食物,在浙江省居民消费营养素的食物来源及提供的能量中占比 42.80%。结合本文评估结果说明富阳区本地地产大米中 4 种重金属暴露水平位于安全限值以内,仅通过本地地产大米摄入铅、镉、铬、砷的风险较低。

由此我们发现,不同的参数选择以及参数的准确性、全面性,都会对重金属暴露风险评估的结果产生影响。而本评估仅针对成年人群以及来自富阳区本地地产大米的重金属暴露情况,并未考虑儿童这一特殊人群,也未考虑居民膳食中的其他食品种类所带来的暴露风险,因此该评估结果并不能代表人群重金属的总暴露风险,还需要进一步完善实验方法,得到更精确的数据,并进行合理统计分析。

## 参考文献

- [1] NASEER R, SULTANA B, KHAN M Z, et al. Utilization of waste fruit-peels to inhibit aflatoxins synthesis by *Aspergillus flavus*: a biotreatment of rice for safer storage [J]. *Bioresource Technology*, 2014, 172: 423-428.
- [2] GADAL N, SHRESTHA J, POUDEL M N, et al. A review on production status and growing environments of rice in Nepal and in the world [J]. *Archives of Agriculture and Environmental Science*, 2019, 4(1): 83-87.
- [3] 章秀福, 王丹英, 方福平, 等. 中国粮食安全和水稻生产[J]. *农业现代化研究*, 2005, 26(2): 85-88.  
ZHANG X F, WANG D Y, FANG F P, et al. Food safety and rice production in China [J]. *Research of Agricultural Modernization*, 2005, 26(2): 85-88.
- [4] 牟仁祥, 陈铭学, 朱智伟, 等. 水稻重金属污染研究进展[J]. *生态环境*, 2004, 13(3): 417-419.  
MOU R X, CHEN M X, ZHU Z W, et al. Advance in the researches on heavy metals in rice [J]. *Ecology and Environment*, 2004, 13(3): 417-419.
- [5] YANG Q Q, LIZ Y, LU X N, et al. A review of soil heavy metal pollution from industrial and agricultural regions in China: pollution and risk assessment [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 642: 690-700.
- [6] 雷鸣, 曾敏, 王利红, 等. 湖南市场和污染区稻米中 As、Pb、Cd 污染及其健康风险评估[J]. *环境科学学报*, 2010, 30(11): 2314-2320.  
LEI M, ZENG M, WANG L H, et al. Arsenic, lead, and cadmium pollution in rice from Hunan markets and contaminated areas and their health risk assessment [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2010, 30(11): 2314-2320.
- [7] 杨菲, 白卢哲, 梁春穗, 等. 2009年广东省市售大米及其制品镉污染状况调查[J]. *中国食品卫生杂志*, 2011, 23(4): 358-362.  
YANG F, BAI L X, LIANG C S, et al. Investigation of the cadmium contamination on retailed rice and rice products in Guangdong province in 2009 [J]. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2011, 23(4): 358-362.
- [8] 吴迪, 杨秀珍, 李存雄, 等. 贵州典型铅锌矿区水稻土壤和水稻中重金属含量及健康风险评估[J]. *农业环境科学学报*, 2013, 32(10): 1992-1998.  
WU D, YANG X Z, LI C X, et al. Concentrations and health risk assessments of heavy metals in soil and rice in zinc-lead mining area in Guizhou Province, China [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, 32(10): 1992-1998.
- [9] LI W L, XU B B, SONG Q J, et al. The identification of 'hotspots' of heavy metal pollution in soil-rice systems at a regional scale in Eastern China [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 472: 407-420.
- [10] 詹珍洁, 陈建业, 管克. 温州市瓯海区市售大米中铅、镉、汞污染状况及健康风险评估[J]. *中国卫生检验杂志*, 2016, 26(6): 875-876, 879.  
ZHAN Z J, CHEN J Y, GUAN K. Research on the contamination status of lead, cadmium and mercury in market-sold rice and its health risk evaluation in Ouhai district of Wenzhou [J]. *Chinese Journal of Health Laboratory Technology*, 2016, 26(6): 875-876, 879.
- [11] EUROPEAN FOOD SAFETY AUTHORITY (EFSA). Cadmium in food - Scientific opinion of the Panel on Contaminants in the Food Chain [J]. *EFSA Journal*, 2009, 7(3): 980.
- [12] EFSA PANEL ON CONTAMINANTS IN THE FOOD CHAIN (CONTAM). Scientific opinion on lead in food [J]. *EFSA Journal*, 2010, 8(4): 1570.
- [13] ALEXANDER J, BENFORD D, BOOBIS A, et al. Scientific opinion on arsenic in food. EFSA panel on contaminants in the food chain (CONTAM) [J]. *EFSA Journal*, 2009, 7(10: 1351): 1-198.
- [14] EFSA PANEL ON DIETETIC PRODUCTS N A A . Scientific opinion on dietary reference values for chromium [J]. *EFSA Journal*, 2014, 12(10): 3845.
- [15] 王凯荣, 郭焱, 何电源, 等. 重金属污染对稻米品质影响的研究[J]. *农业环境科学学报*, 1993, 12(6): 254-257, 288.  
WANG K R, GUO Y, HE D Y, et al. Studies on the influences of heavy metal pollution on the qualities of brown rice [J]. *Journal of Agro-Environmental Science*, 1993, 12(6): 254-257, 288.
- [16] 解怀生, 陈美君, 许兴苗, 等. 土壤 Cd、As、Pb 在水稻植株中的吸收分布特征[J]. *浙江农业科学*, 2010, 51(5): 1056-1058.  
XIE H S, CHEN M J, XU X M, et al. Turang Cd、As、Pb zai

- shuido zhizhuzhong de xishou fenbu tezheng [J]. Journal of Zhejiang Agricultural Sciences, 2010, 51(5): 1056-1058.
- [17] 莫争, 王春霞, 陈琴, 等. 重金属 Cu Pb Zn Cr Cd 在土壤中的形态分布和转化[J]. 农业环境保护, 2002, 21(1): 9-12.  
MO Z, WANG C X, CHEN Q, et al. Form distribution and transformation of heavy metals of Cu, Pb, Zn, Cr and Cd in soils [J]. Agro-Environmental Protection, 2002, 21(1): 9-12.
- [18] LIU J, ZHANG X H, TRAN H, et al. Heavy metal contamination and risk assessment in water, paddy soil, and rice around an electroplating plant [J]. Environmental Science and Pollution Research International, 2011, 18(9): 1623-1632.
- [19] 钟道旭, 韩存亮, 蒋金平, 等. 镀锌厂周围农田土壤-水稻中重金属污染及其风险[J]. 土壤, 2011, 43(1): 143-147.  
ZHONG D X, HAN C L, JIANG J P, et al. Heavy metal contamination in soil-rice grain and its risk assessment around a galvanizing plant [J]. Soils, 2011, 43(1): 143-147.
- [20] 蒋玉根, 戴学龙, 张秀英, 等. 县域尺度土壤重金属含量的空间变异: 以富阳市为例[J]. 浙江农业学报, 2008, 20(5): 339-343.  
JIANG Y G, DAI X L, ZHANG X Y, et al. Spatial distribution of heavy metals in arable topsoil at a regional scale of county—a case of Fuyang county, Zhejiang province of China [J]. Acta Agriculturae Zhejiangensis, 2008, 20(5): 339-343.
- [21] VOLESKY B, HOLAN Z R. Biosorption of heavy metals [J]. Biotechnology Progress, 1995, 11(3): 235-250.
- [22] NOLL M. Trace elements in terrestrial environments [J]. Journal of Environmental Quality, 2002, 32(1): 374.
- [23] 陈惠芳, 李艳, 吴豪翔, 等. 富阳市不同类型农田土壤重金属变异特征及风险评价[J]. 生态与农村环境学报, 2013, 29(2): 164-169.  
CHEN H F, LI Y, WU H X, et al. Characteristics and risk assessment of heavy metals pollution of farmland soils relative to type of land use [J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2013, 29(2): 164-169.
- [24] 李海鹏, 钱小平, 谢鑫鑫. 微波消解-氢化物发生原子荧光法测定紫薯中硒的含量[J]. 中国卫生检验杂志, 2014, 24(20): 2912-2914.  
LI H P, QIAN X P, XIE X X. Determination of selenium in purple potato by microwave digestion-hydride generation atomic fluorescence spectrometry [J]. Chinese Journal of Health Laboratory Technology, 2014, 24(20): 2912-2914.
- [25] EFSA PANEL ON CONTAMINANTS IN THE FOOD CHAIN (CONTAM). Scientific Opinion on the risk for public health related to the presence of mercury and methylmercury in food [J]. EFSA Journal, 2012, 10(12): 2985.
- [26] Joint F A O, WHO Expert Committee on Food Additives, World Health Organization. Safety evaluation of certain contaminants in food: Prepared by the Seventy-second meeting of the Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives (JECFA) [M]. World Health Organization, 2011.
- [27] 陈东, 沙博郁, 赵榕, 等. 石墨炉原子吸收法测定食品中六价铬[J]. 中国食品卫生杂志, 2014, 26(2): 150-152.  
CHEN D, SHA B Y, ZHAO R, et al. Determination of hexavalent chromium in foods by GFAAS [J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2014, 26(2): 150-152.
- [28] 张磊, 李筱薇, 赵云峰, 等. 海产品中无机砷测定方法的研究[J]. 中国食品卫生杂志, 2009, 21(2): 97-103.  
ZHANG L, LI X W, ZHAO Y F, et al. Study on inorganic arsenic in seafood determined by liquid chromatography-atomic fluorescence spectrometry [J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2009, 21(2): 97-103.
- [29] 贾旭东. 健康指导值在食品安全风险评估中的应用[J]. 中国食品卫生杂志, 2011, 23(1): 22-25.  
JIA X D. Derivation of health-based guidance values in food safety risk assessment [J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2011, 23(1): 22-25.
- [30] 罗祎. 食品安全风险分析化学危害评估: 创新及应用版[M]. 北京: 中国质检出版社, 2012.  
LUO Y. Food safety risk analysis chemical hazard risk assessment [M]. Beijing: China Quality Press, 2012.
- [31] 赵秀阁, 段小丽. 中国人群暴露参数手册(成人卷)概要[M]. 北京: 中国环境出版社, 2014.  
ZHAO X G, DUAN X L. Highlights of the Chinese exposure factors handbook (adults) [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2014.
- [32] 陈江, 章荣华, 张荷香, 等. 浙江省城市居民膳食营养摄入状况研究[J]. 中国预防医学杂志, 2011, 12(2): 170-173.  
CHEN J, ZHANG R H, ZHANG H X, et al. Dietary intake and nutrition status of urban residents in Zhejiang province [J]. Chinese Preventive Medicine, 2011, 12(2): 170-173.
- [33] 任韧, 龚立科, 王姝婷, 等. 杭州产大米中重金属污染状况调查及暴露风险评估[J]. 中国卫生检验杂志, 2020, 30(12): 1516-1519, 1528.  
REN R, GONG L K, WANG S T, et al. Survey of heavy metal contamination and risk assessment of exposure in Hangzhou indigenous rice [J]. Chinese Journal of Health Laboratory Technology, 2020, 30(12): 1516-1519, 1528.
- [34] 朱勇, 张亮, 江潇潇, 等. 宁波市稻米5种重金属的风险评估[J]. 浙江农业科学, 2017, 58(11): 2042-2045.  
ZHU Y, ZHANG L, JIANG X X, et al. Ningboshi daomi 5 zhong zhongjinshu de fengxian pinggu [J]. Journal of Zhejiang Agricultural Sciences, 2017, 58(11): 2042-2045.
- [35] 沈群超, 胡寅侠, 蒋开杰, 等. 慈溪地产大米重金属调查及其健康风险评估[J]. 中国稻米, 2013, 19(3): 79-81.  
SHEN Q C, HU Y X, JIANG K J, et al. Cixi dichan dami zhongjinshu diaocha jiqi jiankang fengxian pinggu [J]. China Rice, 2013, 19(3): 79-81.