

研究报告

累积暴露评估方法在吉林省灵芝消费人群有害元素及
农药残留暴露评估中的应用刘思洁¹, 张磊², 郭金芝¹, 石矛¹, 马杰¹, 姜楠¹

(1. 吉林省疾病预防控制中心(吉林省预防医学科学院), 吉林 长春 132001; 2. 国家食品安全风险评估中心, 北京 100021)

摘要:目的 了解吉林省食药物质灵芝中元素含量水平及农药残留现状, 评估消费人群消费灵芝摄入 Pb、Cd、As、Hg 4 种有害元素及检出的农药残留可能引起的累积暴露健康风险。方法 采集 48 份吉林省内种植的灵芝样品, 按照食品安全国家标准方法对灵芝中 37 种元素含量和 57 种农药残留含量进行检测。利用确定性点评估方法计算灵芝消费人群 Pb、Cd、As、Hg 及菊酯类农药残留的暴露水平, 并应用危害指数法(HI)和相对效能因子法(RPF)对有害元素和菊酯类农药残留累积暴露水平进行描述。结果 吉林省种植灵芝中 Pb、Cd、As、Hg 4 种有害元素普遍检出, 检出率在 95.8%~100.0% 之间, Pb 和 Hg 存在超标现象, 超标率分别为 2.08% 和 4.17%。4 种元素日平均暴露水平在 0.000 2~0.001 1 $\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{BW})$ 之间; 高消费人群暴露水平在 0.000 3~0.003 4 $\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{BW})$ 之间, 分析 Pb、Cd、As、Hg 4 种元素的累积暴露情况, 人群平均消费水平的 HI 值为 1.98×10^{-3} , 高消费人群的 HI 值为 6.26×10^{-3} 。5 种菊酯类农药的检出率在 4.17%~16.7% 之间, 急性暴露水平在 4.64×10^{-5} ~ 5.65×10^{-4} $\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{BW})$ 之间, 急性累积暴露水平是 1.25×10^{-3} $\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{BW})$, 分析菊酯类农药累积暴露情况, 暴露限值(MOE)值为 8 800。结论 基于 HI 法和 RPF 法, 评估吉林省灵芝消费人群有害元素及菊酯类农药残留暴露评估情况, 元素慢性累积暴露风险和菊酯类农药残留急性累积暴露风险较低。

关键词: 食药物质; 灵芝; 有害元素; 农药残留; 累积暴露评估

中图分类号: R155

文献标识码: A

文章编号: 1004-8456(2024)11-1214-07

DOI: 10.13590/j.cjfh.2024.11.002

Application of cumulative exposure assessment method for exposure assessment of harmful elements and pesticide residues in *Ganoderma lucidum* consumer population in Jilin ProvinceLIU Sijie¹, ZHANG Lei², GUO Jinzhi¹, SHI Mao¹, MA Jie¹, JIANG Nan¹

(1. Jilin Academy of Preventive Medicine, Jilin Provincial Center for Disease Control and Prevention, Jilin Changchun 132001, China; 2. China National Center for Food Safety Risk Assessment, Beijing 100021, China)

Abstract: Objective To understand the pollution levels of elements and pesticide residues of *Ganoderma lucidum* in Jilin Province. The cumulative exposure health risk of introducing Pb, Cd, As, Hg and pesticide residues when consuming *Ganoderma lucidum*. **Methods** Forty-eight samples of *Ganoderma lucidum* planted in Jilin Province were collected. The contents of 37 elements and 57 pesticide residues were tested in accordance with the national food safety standard method. The exposure level of major Pb, Cd, As, Hg and pesticide residues was calculated by deterministic point assessment method and the cumulative exposure level of hazard index (HI) and relative efficacy factor (RPF). **Results** Pb, Cd, As, Hg were widely detected in Jilin Province, with the detection rate between 95.8% and 100.0%, while the excess rates of Pb and Hg were 2.08% and 4.17%, respectively. The average daily exposure level of the four elements was between 0.000 2 and 0.001 1 $\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{BW})$. The exposure level of the high consumption population was between 0.000 3 and 0.003 4 $\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{BW})$. For the cumulative exposure of Pb, Cd, As, Hg, the HI value of the average consumption level was 1.98×10^{-3} and the HI value of the high consumption population was 6.26×10^{-3} . The detection rate of the 5 pyrethroid pesticides was between 4.17% and 16.7%, the acute exposure level was between 4.64×10^{-5} and 5.65×10^{-4} $\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{BW})$, the acute cumulative exposure level was 1.25×10^{-3} $\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{BW})$. The margin of exposure (MOE)

收稿日期: 2024-05-29

基金项目: 吉林省卫生健康科技能力提升项目(2021GW013); 吉林省食品营养监测与疾病预防重点实验室(YDZJ202102CXJD043)

作者简介: 刘思洁 女 主任技师 研究方向为食品检测与评估 E-mail: 0928lsj@163.com

value of pyrethroid pesticides was 8 800. **Conclusion** Based on HI method and RPF method, the exposure assessment of hazardous elements and pyrethroid pesticide residues in the consumer population of *Ganoderma lucidum* in Jilin Province was evaluated. The risk of chronic cumulative exposure of elements and the risk of acute cumulative exposure of pyrethrin pesticide residues were at acceptable levels.

Key words: Medicine and food homology substances; *Ganoderma lucidum*; harmful elements; pesticide residues; cumulative exposure assessment

民以食为天,食以安为先。《“健康中国 2030”规划纲要》指出要加强食品安全风险监测、深入开展农产品质量安全评估,让人民群众吃得安全、吃得放心。目前,食品中单一化学物风险评估框架起源于 1983 年美国国家研究委员会提出的风险评估四步法,方法日趋完善,相关报道较多^[1-3]。然而,现实生活中人们通过食物摄取的化学物往往复杂多样,且各化学物之间存在相互作用^[4]。毒理学上认为,两种或两种以上化合物进入机体,可能产生相互作用,彼此影响代谢动力学过程及毒性效应^[4]。单一化学物质的膳食暴露评估,难以准确描述人们摄入不同化学物质同时带来的健康风险情况^[5]。1986 年开始,国际上的研究机构已经开始关注多样化化合物的联合作用。自此,多化合物的联合暴露对人体健康的影响和多化合物累积引起的健康风险大小,越来越受到科学家和管理者的关注。

食药同源文化在我国有着悠久的历史,2023 年国家卫生健康委员会和国家市场监督管理总局联合发布公告,将党参、肉苁蓉(荒漠)、铁皮石斛、西洋参、黄芪、灵芝、山茱萸、天麻、杜仲叶等 9 种物质纳入按照传统既是食品又是中药材的物质目录。为满足社会对健康食品的多元化需求,并保障消费者健康,开展化学物质累积暴露风险评估研究,充分了解食药物质的安全性十分必要。

本研究以吉林省灵芝的有害元素及农药残留污染物监测数据为例,重点关注对人体神经系统、呼吸系统、心血管系统、生殖系统、免疫系统等造成危害的铅(Pb)、镉(Cd)、砷(As)、汞(Hg)4 种有害元素和菊酯类农药残留,分析灵芝消费人群摄入灵芝引入的重点关注元素及农药残留累积暴露风险。研究基于危害指数法(Hazard index, HI)和相对效能因子法(Relative efficiency factor method, RPF),评估吉林省灵芝消费人群食用灵芝引入的元素慢性累积暴露风险和菊酯类农药残留急性累积暴露水平,为进一步提出合理的灵芝食用建议提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 数据来源

污染物数据:吉林省 2021—2023 年食品安全

风险监测数据,样品采集于吉林省白山市、通化市、延边州等主要种植区域种植环节,采收当年种植的灵芝样品,共计 48 份,检测元素及农药残留含量,选取重点关注 4 种元素(Pb、Cd、As、Hg)及检出的菊酯类农药(氯氰菊酯、氯氟氰菊酯、氟氯氰菊酯、溴氰菊酯、烯丙菊酯)两大类外源性污染物,进行化学物质累积暴露评估。

消费量数据:参照国家食品安全风险评估中心组织开展的“2019—2022 年中国成年居民药食同源物质消费量调查”中灵芝的相应消费量数据,利用非连续 3 d 24 h 回顾法和过去 1 年食物消费频率法,以问卷调查的形式在全国 8 省开展的 18 岁及以上灵芝消费量人群灵芝消费状况调查,共获得 1 236 条有效的灵芝消费人群数据。

剂量反应关系:元素 Pb 和 As(参照无机砷)的基准计量值(Benchmark dose, BMD)以及 Cd 和 Hg(参照甲基汞)的健康指导值来自联合国粮农组织(Food and Agriculture Organization of the United Nations, FAO)/世界卫生组织(World Health Organization, WHO)食品添加剂联合专家委员会(Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives, JECFA)的评估报告^[6-9]。5 种菊酯类农药的 BMD 值、RPF 值及溴氰菊酯的毒性分离点值(Point of departure, POD),参考美国环境保护署(U. S. Environmental Protection Agency, US EPA)的《拟除虫菊酯/拟除虫菊酯累积风险评估》^[10]。

1.2 方法

1.2.1 灵芝中污染物含量测定方法及数据处理

评估过程元素的测定方法参照 GB 5009. 268—2016《食品安全国家标准 食品中多元素的测定》中电感耦合等离子体质谱法(Inductive Coupled Plasma Mass Spectrometer, ICP-MS)^[11],农药残留的测定方法参照 GB 23200. 113—2018《食品安全国家标准 植物源性食品中 208 种农药及其代谢物残留量的测定 气相色谱-质谱联用法》^[12],为保障数据质量,检测过程同时进行质量控制实验。评估过程的数据处理参照 WHO 全球环境监测系统/食品污染监测与评估规划(GEMS/FOOD)第 2 次会议“食品中

低水平污染物可信评鉴”中对未检出数据的处理原则^[13]处理。

1.2.2 暴露评估方法

1.2.2.1 元素慢性累积暴露评估

采用确定性点评估模型及危害指数法,评估元素的慢性暴露情况,计算公式为:

$$\text{Exp} = \frac{C \times \text{IR}}{\text{BW}} \quad (1)$$

$$\text{HI} = \sum_{i=1}^n \text{HQ} = \sum_{i=1}^n \frac{\text{EXP}_i}{(\text{HBGV}_i)} \quad (2)$$

当 $\text{HI} < 1$ 时,认为风险是可以接受; $\text{HI} > 1$ 时,认为风险是不可以接受^[5]。

式中: EXP 为元素的暴露量, $\mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{BW})$; IR 为每日灵芝的消费量, g ; C 为灵芝中元素污染物的平均含量, mg/kg ; BW 为消费者人群的平均体重, kg 。 HQ 为单一化学物的危害系数; HI 为多元素的化学物的危害指数; EXP_i 为化合物 i 的暴露量, $\mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{BW})$; HBGV_i 为该化合物的健康指导值, $\mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{BW})$ 。

1.2.2.2 菊酯类农药残留的急性累积暴露评估

采用国际估计的短期摄入量模型(International English Language Testing System, IESTI)结合 RPF 法,评估菊酯类农药残留的急性累积暴露情况,计算公式为:

$$\text{IESTI}_{\text{累积}} = \text{RPF}_i \times \sum_{i=1}^n \frac{\text{HR}_i \times \text{LP} \times v}{\text{BW}} \quad (3)$$

$$\text{MOE} = \frac{\text{POD}}{\text{IESTI}_{\text{累积}}} \quad (4)$$

$\text{IESTI}_{\text{累积}}$ 短期摄入量, $\text{mg}/\text{kg} \cdot \text{BW}$; RPF_i : 将各菊酯类化合物的暴露转换为溴氰菊酯的暴露当量; HR_i 菊酯类农药残留的最大残留值, mg/kg ; LP : 灵芝消费最大量 ($P_{97.5}$ 消费量), kg ; v : 变异因子=3。 MOE 菊酯类农药相当于溴氰菊酯的暴露边际值; POD 溴氰菊酯的毒性分离点(即 BMDL_{20} 值)。

2 结果

2.1 灵芝中元素及农药残留含量

对灵芝中 B、Na、Mg、Al、K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Se、Sr、Mo、Cd、Ba、Hg、Pb、稀土元素 15 种,共计 37 种元素含量进行了测定,选取重点关注的 Pb、Cd、As、Hg 4 种元素进行累积暴露评估,4 种元素的检出率为 95.8%~100.0%,平均含量 $\text{Pb} > \text{As} > \text{Hg} > \text{Cd}$ 。2023 年 11 月灵芝被正式纳入食药物质管理,参照《关于党参等 9 种新增按照传统既是食品又是中药材的物质公告》的限量要求^[14],灵芝中 $\text{Pb} \leq 1.0 \text{ mg}/\text{kg}$ 、 $\text{Cd} \leq 0.5 \text{ mg}/\text{kg}$ 、 $\text{As} \leq 1.0 \text{ mg}/\text{kg}$ 、 $\text{Hg} \leq 0.1 \text{ mg}/\text{kg}$ 。检出的 1 份样品 Pb 超标,2 份 Hg 样品

超标,超标率分别为 2.08% 和 4.17%。对灵芝中甲胺磷、乙酰甲胺磷、氧乐果、水胺硫磷、三唑磷、灭线磷、甲拌磷、甲拌磷砒、甲拌磷亚砒、敌敌畏、乐果;克百威、3-羟基克百威、涕灭威、涕灭威砒、涕灭威亚砒、灭多威;氯氰菊酯、氯氟氰菊酯、联苯菊酯、甲氰菊酯、氟氰菊酯、溴氰菊酯、氰戊菊酯; α -硫丹、 β -硫丹、硫丹硫酸酯、六六六 4 种、滴滴涕 4 种、吡虫啉、啉虫脒、烯酰吗啉、五氯硝基苯、啉霉胺、甲霜灵、腐霉利、三唑酮、苯醚甲环唑、百菌清、丙环唑、戊唑醇、吡唑醚菌酯;多效唑、苯醚甲环唑、丙环唑、恶霉灵、井冈霉素、烯丙菊酯、胺菊酯、七氯、六氯苯,共计 57 种农药残留含量进行了测定。48 份灵芝样品仅菊酯农药残留检出,检出率最高的为烯丙菊酯,其平均含量 $0.205 \text{ mg}/\text{kg}$,检出的农药残留未见超标现象。灵芝中元素及农药残留的检出情况见表 1。

2.2 灵芝消费人群消费水平分析

由于没有吉林省灵芝人群消费数据,本研究的消费量数据采用国家食品安全风险评估中心组织开展的“2019—2022 年中国成年居民药食同源物质消费量调查”中灵芝的相应消费量数据,结果见表 2。分析的年龄划分根据 2021 年 WHO 年龄分段标准,对不同性别的青年人(18~44 岁)、中年人(45~59 岁)和老年人(60 岁以上)食药物质的消费情况进行统计。灵芝消费人群的日消费量范围为 $0.003 \sim 48.6 \text{ g}/\text{d}$,平均消费量为 $0.500 \text{ g}/\text{d}$,中位数消费量为 $0.110 \text{ g}/\text{d}$, P_{95} 消费量(高消费人群)为 $1.52 \text{ g}/\text{d}$, $P_{97.5}$ 消费量(消费最大量)为 $2.86 \text{ g}/\text{d}$ 。分析不同性别、年龄组灵芝消费人群消费量情况,45~59 岁男性消费人群灵芝的消费量高于其他消费人群。本次评估过程主要考察消费人群整体的消费量情况。

2.3 灵芝消费人群有害元素及农药残留累积暴露评估

采用 HI 法对 Pb、Cd、As、Hg 进行累积暴露评估。JECFA 第 73 次会议认为 Cd 是基于肾脏中的长期生物蓄积,直到暴露 45~60 年后才达到稳定状态,确立了 Cd 的 PTMI 为 $25 \mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{BW})$,反映了 Cd 在人体中的长半衰期;基于无机 Hg 引起 Fischer 大鼠和 B6C3F1 小鼠的肾脏质量变化、近端小管损伤和进行性肾病病变,JECFA 将无机 Hg 的 PTWI 确立为 $4 \mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{BW})$;无机 As 导致人类肺癌为毒性效应终点的基准剂量的下限($\text{BDML}_{0.5}$)为 $3 \sim 5 \mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{BW})$,依据风险评估保守原则,本研究采用 $\text{BDML}_{0.5}$ 为 $3 \mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{BW})$;Pb 对导致成人收缩压上升 1 mmHg 的($\text{BMDL}_{0.1}$)为 $1.2 \mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{BW})$ 。

灵芝消费人群摄入元素的暴露水平及其评估

结果见表 4。4 种元素日平均暴露水平在 0.000 2~0.001 1 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$ 之间; P_{95} 暴露水平在 0.000 3~0.003 4 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$ 之间, 计算 Pb、Cd、As、Hg 4 种元素进行累积暴露情况, 人群平均消费水平的 HI 值为 1.98×10^{-3} , 人群中位数消费水平的 HI 值为 3.95×10^{-4} , 高消费人群的 HI 值为 6.26×10^{-3} 。

表 1 灵芝中元素及农药残留的检出情况(n=48)

Table 1 The content of elements and pesticide residues in *Ganoderma lucidum* (n=48)

元素	检出率/%	超标率/%	检测值范围/(mg/kg)	平均值/(mg/kg)	中位值/(mg/kg)	P_{95} /(mg/kg)
B	100	—	0.222~19.2	5.43	4.07	13.5
Na	100	—	4.70~299	90.7	76.4	243
Mg	100	—	569~2 091	856	794	1 214
Al	100	—	6.82~174	67.9	60.2	153
K	100	—	619~8 987	3 619	3 202	8 349
Ca	100	—	1 419~3 499	2 211	1 937	3 353
V	100	—	0.015 8~0.998	0.209	0.137	0.586
Cr	100	—	8.57	7.99	1.01	55.4
Mn	100	—	6.15~66.8	33.6	34.0	57.2
Fe	100	—	26.2~911	162	72.7	575
Co	100	—	0.016 0~0.765	0.126	0.073 1	0.526
Ni	100	—	0.141~9.55	1.84	0.785	8.57
Cu	100	—	0.302~19.6	6.42	4.84	15.7
Zn	100	—	2.07~31.8	10.5	6.21	27.1
As	100	0.00	0.008 55~0.419	0.129	0.078 7	0.307
Se	82.8	—	ND**~0.199	0.046 2	0.029 6	0.119
Sr	100	—	4.97~18.9	10.1	9.35	18.40
Mo	100	—	0.032 2~0.734	0.122	0.059 5	0.347
Cd	100	0.00	0.011 2~0.241	0.081	0.065	0.235
Ba	100	—	1.00~33.0	12.1	9.09	30.0
Hg	95.8	4.17	ND~0.167	0.032 9	0.042 8	0.094 8
Pb	100	2.08	0.026 0~1.24	0.219	0.118	0.838
稀土元素*	100	—	0.065 3~2.49	0.632	0.548	1.72
氯氟菊酯	10.4	0.00	ND~1.75	0.143	0.025	1.10
氯氟氰菊酯	4.17	0.00	ND~1.53	0.087 1	0.025	0.025
氟氯氰菊酯	4.17	0.00	ND~1.56	0.088 3	0.025	0.025
溴氰菊酯	4.17	0.00	ND~4.05	0.191	0.025	0.025
烯丙菊酯	16.7	0.00	ND~2.29	0.205	0.025	1.34

注: *稀土元素含量为 Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu 含量之和; **ND 为检测值低于方法的检出限

表 2 不同性别、年龄组灵芝消费人群消费量

Table 2 Consumption of *Ganoderma lucidum* consumer groups of different genders and age groups

人群分组	人数/人	平均体质量/kg	消费量范围/(g/d)	均值/(g/d)	中位值/(g/d)	P_{95} /(g/d)	$P_{97.5}$ /(g/d)
18~44 岁男	235	68.5	0.006~21.4	0.367	0.100	1.00	1.68
18~44 岁女	262	55.1	0.003~7.14	0.399	0.110	1.43	2.86
45~59 岁男	189	68.7	0.006~28.6	0.865	0.132	2.86	2.99
45~59 岁女	225	57.6	0.006~7.14	0.423	0.137	1.67	2.74
60~88 岁男	156	65.5	0.006~48.6	0.692	0.082	1.68	2.02
60~87 岁女	169	55.8	0.003~10.0	0.361	0.088	1.43	1.95
全人群	1 236	61.6	0.003~48.6	0.500	0.110	1.52	2.86

表 3 灵芝消费人群摄入灵芝引入的元素暴露情况

Table 3 The exposure health risk of hazardous elements when consuming *Ganoderma lucidum*

元素	平均消费量/ ($\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$)	HQ	HI	元素	中位值消费量/ ($\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$)	HQ	HI	元素	P_{95} 消费量/ ($\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{BW}$)	HQ	HI
Pb	0.000 5	4.17×10^{-4}		Pb	0.000 1	8.33×10^{-5}		Pb	0.001 7	1.42×10^{-3}	
As	0.000 2	6.67×10^{-5}	1.98×10^{-3}	As	0.000 1	3.33×10^{-5}	3.95×10^{-4}	As	0.000 7	2.33×10^{-4}	6.26×10^{-3}
Cd	0.001 1	1.32×10^{-3}		Cd	0.000 2	2.40×10^{-4}		Cd	0.003 4	4.08×10^{-3}	
Hg	0.000 1	1.75×10^{-4}		Hg	0.000 0	3.85×10^{-5}		Hg	0.000 3	5.25×10^{-4}	

以 WOLANSKY 和 WIL FOB 等学者在玉米油中添加拟除虫菊酯类农药, 进而以观察菊酯类农药对大鼠类运动活动研究为基础, 美国 EPA 选取溴氰菊酯为指示性化合物, 对菊酯类农药残留累积暴露评估^[10], 报告将各菊酯类农药的 BMD_{20} 与溴氰菊酯 BMD_{20} 相

比较, 计算得到相应的 RPF 值。指示性化合物溴氰菊酯 95% 可信区间的 BMDL_{20} 为 $14.5 \text{ mg}/\text{kg}^{[10]}$, 用于危害特征描述 MOE 值的计算。菊酯类农药残留的急性累积暴露情况见表 4。灵芝消费人群消费灵芝引入的菊酯类农药急性暴露水平为 4.64×10^{-5} ~

表4 菊酯类农药残留的急性累积暴露情况

Table 4 The acute exposure level of pesticide residues when consuming *Ganoderma lucidum*

农药类别	BMD ₂₀ /(mg/kg·BW)	RPF	IESTI/(mg/kg·BW)	MOE	IESTI _{累积} /(mg/kg·BW)	MOE _{累积}
氯氟菊酯	76.3	0.19	4.64×10 ⁻⁵	1.65×10 ⁶		
氯氟氰菊酯	8.9	1.63	3.48×10 ⁻⁴	2.56×10 ⁴		
氟氯氰菊酯	12.6	1.15	2.50×10 ⁻⁴	5.04×10 ⁴	1.25×10 ⁻³	8.80×10 ³
溴氰菊酯	14.5	1.00	5.65×10 ⁻⁴	2.57×10 ⁴		
烯丙菊酯	135	0.11	3.51×10 ⁻⁵	3.85×10 ⁶		

5.65×10⁻⁴ mg/(kg·BW),急性累积暴露水平是1.25×10⁻³ mg/(kg·BW),计算菊酯类农药单一暴露情况,MOE值为2.57×10⁴~3.85×10⁶;计算菊酯类农药急性累积暴露情况,MOE值为8800。

3 讨论

《中国药典》2020年版规定药用灵芝,Pb≤5 mg/kg、As≤2 mg/kg、Cd≤1 mg/kg、Hg≤0.2 mg/kg。依据药典限量要求,吉林省种植灵芝样品4种金属含量均符合限量要求;2023年《关于党参等9种新增按照传统既是食品又是中药材的物质公告》规定“灵芝”,Pb≤1.0 mg/kg、Cd≤0.5 mg/kg、As≤1.0 mg/kg、Hg≤0.1 mg/kg。吉林省种植灵芝样品4种金属,1份样品Pb超标,2份样品Hg超标,超标率分别为2.08%和4.17%。从限量标准角度,灵芝批准进入食品行业金属限量要求变得更严格了。李建伟等^[15]与陆才洋等^[16]学者分别对产地为安徽省和湖南省的灵芝中元素含量测定。参照药食同源公告的限量标准,4种元素均存在超标现象,说明元素在灵芝样品中易于富集,且有必要对灵芝中元素的食用安全性进行评估。受环境条件、气候状况、作物类型和土壤类型等因素的影响,吉林省种植灵芝中仅5种菊酯农药残留检出,未见灵芝菊酯类农药残留的限量依据,因此本研究同时对该5种菊酯农药残留进行评估。

为了更准确地描述人们摄入不同化学物质同时带来的健康风险情况,本研究对关注的有害元素和菊酯类农药残留采用累积暴露评估的方法进行研究。现阶段累积暴露评估方法通常是以剂量相加或效应相加为基本假设^[17],常用方法为:HI法、联合暴露边界比法、RPF法/毒性当量因子法、分离点指数法、累积风险指数法等。

目前,元素的累积暴露评估大部分集中在HI法。考虑国际上建议累积评估分层开展,首先用不经效应调整的HI作第一层评估,HI法的优点是快速简单,多用于初级的累积风险评估,有风险再做同一效应调整后的累积评估^[17]。本研究优先采用HI法对灵芝消费人群重点关注的Pb、Cd、As、Hg4种元素进行累积暴露评估。JECFA提出As导致肺癌发病率比本底值增长0.5%的每日基准剂量下限值(BMDL_{0.5})

3.0 μg/(kg·BW)和成年人心血管效应毒性终点收缩压基准剂量下限值(BMDL₁₀)1.2 μg/(kg·BW)。上述BMDL的设定基于人群实验,因此风险特征描述可将Pb和As的BMDL视为其健康指导值。同时计算了4种元素各自暴露的HQ值和累积暴露HI值,可以看出HI值可以更全面地评估多元素带来的累积风险情况。计算4种元素的累积暴露水平,人群平均消费水平的HI值为1.98×10⁻³,人群中位数消费水平的HI值为3.95×10⁻⁴,人群高消费水平HI值6.26×10⁻³。消费人群仅灵芝消费引入有害元素累积暴露风险水平较低。

然而,现实生活中人们的食物摄入往往是复杂多样的,吉林省居民膳食中As、Cd、Hg、Pb的暴露水平情况已有报道,As为每日0.85 μg/(kg·BW)、Cd为每月0.746 μg/(kg·BW)、Hg为每周0.07 μg/(kg·BW)、Pb为每周10.12 μg/(kg·BW)^[23,18-19],整理换算为暴露水平分别为0.85、0.0248、0.01、1.45 μg/(kg·BW)。仅摄入Pb暴露就已经超过JECFA推荐的基准剂量值1.2 μg/(kg·BW),4种元素日常膳食来源的累积暴露水平HI值大于1,可见吉林省居民日常膳食摄入4种元素的累积暴露风险不容忽视。因此,吉林省灵芝消费人群在关注灵芝消费带入元素污染的同时,也应关注其他食物摄取带入元素的整体暴露风险。

目前,农药残留的累积暴露评估HI法和RPF法都有应用,急性累积暴露评估和慢性累积暴露评估也均见报道。综合文献资料,菊酯类农药具有急性神经性毒性,累积暴露评估侧重急性(24h)暴露期内研究,且菊酯类农药有相似的化学结构,毒性作用机制相同,仅不同的菊酯类农药的毒性潜能有一定的差异^[10]。因此,本研究最终参照USEPA的菊酯类农药累积暴露评估报告,对灵芝消费人群食用灵芝摄入的菊酯类农药残留的急性累积暴露评估情况进行评估。计算各菊酯类农药相对于指示性化合物溴氰菊酯的暴露水平,并计算各菊酯类农药的急性暴露情况,MOE值在2.57×10⁴~3.85×10⁶之间;进一步加和,计算灵芝消费人群食用灵芝摄入菊酯类农药的急性累积暴露水平,MOE值8.80×10³。RPF法优点是考虑了各化学物的效能和浓度,对暴露的估计更加精确。USEPA报告认为,6岁以

上人群菊酯类农药的 MOE 值 ≥ 100 ,累积暴露风险可以接受^[10]。因此,灵芝消费人群消费灵芝摄入的菊酯类农药急性累积暴露水平处在可接受水平。

值得注意的是,本研究的 HI 法依托的健康指导值是在化合物敏感毒性效应分离点的基础上,考虑实验动物与人种属差异,以及人群个体差异等引入不确定系数制定,仅适用于初级的累积风险评估,准确性不够^[17]。想要进一步获得灵芝高消费人群更准确的累积暴露评估情况,接下来的研究可以考虑基于相同毒理学效应终点的 RPF 法对 4 种关注元素的累积暴露情况进行再评估,目前 RPF 法基于神经毒性和肾毒性的 RPF 累积暴露评估方法已经在“中国水产品重金属暴露的累积风险评估”中进行了应用^[20]。鉴于本次初级评估已提示灵芝摄入导致的重金属和菊酯类农药累积暴露风险较低,故无须再开展进一步的精确评估。

综上,本研究基于现有的 HI 和 RPF 2 种累积暴露评估方法,对吉林省灵芝消费人群有害元素及农药残留的累积暴露情况进行评估,结果证明,仅消费吉林省灵芝摄入 Pb、Cd、As、Hg 及菊酯类农药残留引起的健康风险较低。需要说明的是,本研究的评估内容只考虑了消费人群摄入灵芝单一食品 Pb、Cd、As、Hg 及农药残留污染状况,未考虑多品种食物的联合暴露情况,对消费人群整体的 Pb、Cd、As、Hg 及菊酯类农药残留暴露状况评估不全面性;评估过程消费量数据来自全国的消费人群数据,与吉林省消费人群的消费方式存在不一致现象,存在不确定性;评估过程菊酯类农药残留应用的检测最大值,As、Hg 元素的含量应用的是总 As 和总 Hg 的平均值,使得最终计算得到的暴露评估结果在一定程度上高估,但也保障了结果的充分保守。针对上述不确定性在今后的工作中需要进一步开展相关研究工作。

参考文献

- [1] 蒋定国,王竹天,杨杰,等. 2000—2009年中国食品化学污染物监测概况与分析[J]. 卫生研究, 2012, 41(2): 204-208.
JIANG D G, WANG Z T, YANG J, et al. Overview and analysis of food chemical contaminant monitoring in 2000—2009 in China [J]. Journal of Hygiene Research, 2012, 41(2): 204-208.
- [2] 刘思洁,王慧,王博,等. 吉林省主要食品中砷污染状况及居民膳食暴露风险评估[J]. 中国食品卫生杂志, 2018, 30(6): 645-649.
LIU S J, WANG H, WANG B, et al. Arsenic contamination in main foods and the dietary exposure assessment for the population of Jilin Province, China [J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2018, 30(6): 645-649.
- [3] 刘思洁,白光大,王慧,等. 吉林省居民主要膳食镉暴露风险评估[J]. 现代预防医学, 2018, 45(17): 3111-3113, 3117.
LIU S J, BAI G D, WANG H, et al. Risk assessment of major dietary cadmium exposure for the residents, Jilin [J]. Modern Preventive Medicine, 2018, 45(17): 3111-3113, 3117.
- [4] 鲍涵冰,刘兆平,魏晟,等. 国内外化学混合物联合作用的累积暴露风险评估模型与方法研究现状[J]. 中国食品卫生杂志, 2022, 34(1): 175-183.
BAO H B, LIU Z P, WEI S, et al. Review on cumulative exposure risk assessment model and method of combined action of chemical mixtures at home and abroad [J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2022, 34(1): 175-183.
- [5] 毛伟峰,隋海霞,刘爱东,等. 累积风险评估方法在典型人群饮料中铅和镉联合暴露评估中的应用[J]. 中国食品卫生杂志, 2018, 30(3): 307-311.
MAO W F, SUI H X, LIU A D, et al. Application research of cumulative risk assessment on combined exposure of lead and cadmium in beverages in typical beverage consumers [J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2018, 30(3): 307-311.
- [6] JECFA. Summary report of the seventy-fourth meeting of JECFA [C]. Rome: JECFA Seventy-Fourth Meeting, 2011.
- [7] WHO JECFA. TRS 959-JECFA 72 [DB/OL]. (2021-02-16). [2024-03-04]. <https://apps.who.int/food-additives-contaminants-jecfa-database/Home/Chemical/1806>.
- [8] WHO JECFA. TRS 959-JECFA 72 [DB/OL]. (2010-02-16) [2024-03-04]. <https://apps.who.int/food-additives-contaminants-jecfa-database/Home/Chemical/1863>.
- [9] WHO JECFA. TRS 683-JECFA 26/31 [DB/OL]. (1982-04-19) [2024-03-04]. <https://apps.who.int/food-additives-contaminants-jecfa-database/Home/Chemical/2824>.
- [10] WHO JECFA. TRS 1036-JECFA91/3. [DB/OL]. (2021-02-01). [2024-03-04] <https://apps.who.int/food-additives-contaminants-jecfa-database/Home/Chemical/1863>.
- [11] 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 食品中多元素的测定: GB 5009.268—2016[S]. 北京: 中国标准出版社, 2016: 1-14.
National Health and Family Planning Commission of the People's Republic of China, State of Food and Drug Administration. National Standard for Food Safety, Determination of multiple elements in food: GB 5009.268—2016 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2016.
- [12] 中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会, 中华人民共和国农业农村部, 国家市场监督管理总局. 食品安全国家标准 植物源性食品中 208 种农药及其代谢物残留量的测定 气相色谱-质谱联用法: GB 23200.113—2018[S]. 中国农业出版社出版, 2018: 1-44.
National Health and Family Planning Commission of the People's Republic of China, Ministry of Agriculture and Rural Affairs of the People's Republic of China, State Administration for Market Regulation. National Standard for Food Safety, National food safety standard Determination of 208 pesticides and metabolites residues in foods of plant origin Gas chromatography-tandem mass spectrometry method: GB 23200.113—2018 [S]. China Agriculture Press, 2018: 1-44.
- [13] GEMS/Food-EUROS. Reliable Evaluation of Low-Level Contamination

- of Food [C]//Second Workshop. GEM/Food-EUROS, 26-27 May, Kulmbach, Federal Republic of Germany, 1995.
- [14] 食品安全标准与监测评估司. 关于党参等9种新增按照传统既是食品又是中药材的物质公告[EB/OL]. (2023-11-17) [2023.12.20]. <http://www.nhc.gov.cn/sps/s7892/202311/f0d6ef3033b54333a882e3d009ff49bf.shtml>.
- National Health Commission of the People's Republic of China, State Administration for Market Regulation. "Announcement about new addition 9 kinds of substances including codonopsis, which according to tradition both food and Chinese medicine" (No. 9 of 2023) [EB/OL]. (2023-11-09) [2023-11-20]. <http://www.nhc.gov.cn/sps/s7892/202311/f0d6ef3033b54333a882e3d009ff49bf.shtml>.
- [15] 李建伟, 李昌安, 章剑. 微波消解-电感耦合等离子体质谱法测定药食同源性食品中34种元素[J]. 安徽预防医学志, 2023, 29(4): 346-351.
- LI J W, LI C A, ZHANG J. Microwave digestion followed by ICP-MS for the determination of 34 elements in medicine-food homologous food [J]. Anhui Journal of Preventive Medicine, 2023, 29(4): 346-351.
- [16] 陆才洋, 匡创富, 梁雪娟, 等. 灵芝中外源性污染物分析及风险评估[J]. 湖南中医志, 2023, 39(10): 187-192.
- LU C Y, KUANG C F, LIANG X J, et al. Content analysis and health risk assessment of exogenous pollutants in *Ganoderma lucidum* [J]. Hunan Journal of Traditional Chinese Medicine, 2023, 39(10): 187-192.
- [17] 张磊, 李凤琴, 刘兆平. 食品中化学物累积风险评估方法及应用[J]. 中国食品卫生杂志, 2011, 23(4): 378-382.
- ZHANG L, LI F Q, LIU Z P. Cumulative risk assessment of chemicals in food [J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2011, 23(4): 378-382.
- [18] 王博, 王慧, 刘思洁. 吉林省居民膳食汞暴露评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2017, 8(12): 4908-4913.
- WANG B, WANG H, LIU S J. Assessment on dietary mercury exposure risk among residents in Jilin province [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2017, 8(12): 4908-4913.
- [19] 王慧, 王博, 刘思洁. 吉林省居民膳食铅暴露风险评估[J]. 卫生研究, 2019, 48(3): 488-492.
- WANG H, WANG B, LIU S J. Dietary exposure and risk assessment to lead of the population in Jilin Province [J]. Journal of Hygiene Research, 2019, 48(3): 488-492.
- [20] HUI W, FENG M W, GUO J D, et al. Cumulative risk assessment of exposure to heavy metals through aquatic products in China [J]. Biomed Environ Sci, 2021, 34(8): 606-615.