

6 种药食两用中药材中多环芳烃污染水平及健康风险评估

曹德艳^{1,2}, 赵思源^{1,2}, 秦佳琪^{1,2}, 王焱^{1,2}, 周同宁^{1,2}, 朱美霖^{1,3*}

(1. 宁夏医科大学公共卫生与管理学院, 银川 750004; 2. 宁夏医科大学环境因素与慢性病控制重点实验室, 银川 750004; 3. 宁夏医科大学基础医学院, 银川 750004)

摘要: 目的 了解人参、甘草、地黄、杜仲、连翘、玫瑰花 6 种药食两用中药材中多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)的污染水平及其对人群健康的影响。**方法** 查阅中药材中 PAHs 残留污染相关文献, 搜集中药材受 PAHs 污染的数据, 采用美国环保局(United States of America, Environmental Protection Agency, USA EPA)推荐的终生致癌风险(incremental lifetime cancer risk, ILCR)为度量指标, 进行健康风险评估。**结果** 药食两用中药材中 PAHs 残留的总含量范围为 nd~5400.99 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 均值为 828.603 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 中药材中 PAHs 平均浓度为: 甘草>杜仲>玫瑰花>地黄>连翘>人参。健康风险评估表明不同年龄组摄入人参、连翘的致癌风险可以忽略(ILCR 小于 10^{-6}), 摄入甘草、玫瑰花存在潜在的致癌风险(ILCR 在 10^{-6} ~ 10^{-4} 之间); 不同人群的终生致癌风险顺序为: 成年人>儿童>老年人>青少年; 6 种中药材受 PAHs 污染的程度不同, 所引起的致癌风险为: 甘草>玫瑰花>地黄>杜仲>连翘>人参。**结论** 6 种药食两用中药材中普遍存在 PAHs 污染, 对人群健康有一定的危害, 本研究利用终生致癌风险评估模型对药食两用的中药材 PAHs 污染情况进行预警, 有助于以中药材为原料的药食两用食品的开发研究, 同时为制定中药材中 PAHs 污染控制标准提供参考依据。

关键词: 药食两用; 中药材; 多环芳烃; 致癌风险评估

Pollution level and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in 6 kinds of Chinese medicinal and edible materials

CAO De-Yan^{1,2}, ZHAO Si-Yuan^{1,2}, QIN Jia-Qi^{1,2}, WANG Yan^{1,2},
ZHOU Tong-Ning^{1,2}, ZHU Mei-Lin^{1,3*}

(1. School of Public Health and Management, Ningxia Medical University, Yinchuan 750004, China; 2. Key Laboratory of Environmental Factors and Chronic Disease Control, Ningxia Medical University, Yinchuan 750004, China; 3. College of Basic Medical Sciences, Ningxia Medical University, Yinchuan 750004, China)

ABSTRACT: Objective To investigate the pollution levels of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in 6 kinds of Chinese medicinal and edible materials of ginseng, liquorice, rehmannia glutinosa, eucommia ulmoides, forsythia suspensa and rose and their effects on people's health. **Methods** Literature related to PAHs residue pollution in Chinese medicinal materials was consulted, and the data of PAHs pollution in Chinese medicinal materials were

基金项目: 国家自然科学基金项目(21966025、21667023)、教育部春晖计划项目(Z2016068)

Fund: Supported by the National Natural Science Foundation of China (21966025, 21667023), and the Chunhui of Ministry of Education Project (Z2016068)

*通信作者: 朱美霖, 博士, 副教授, 主要研究方向为食品安全与卫生。E-mail: jay70281@163.com

*Corresponding author: ZHU Mei-Lin, Ph.D, Associate Professor, School of Public Health and Management, Ningxia Medical University, No.1160, Shengli Street, Xingqing District, Yinchuan City, Ningxia Hui Autonomous Region, Yinchuan 750004, China. E-mail: jay70281@163.com

collected, the incremental lifetime cancer risk (ILCR) recommended by the (United States of America, Environmental Protection Agency (USA EPA) was used as the measurement index to conduct health risk assessment. **Results** The total content of PAHs residues in medicinal and edible Chinese medicinal materials ranged from nd to 5400.99 $\mu\text{g}/\text{kg}$, with the average value of 828.603 $\mu\text{g}/\text{kg}$. The average concentration of PAHs in Chinese medicinal materials was: Glycyrrhiza uralensis>eucommia ulmoides>rose>rehmannia glutinosa>forsythia suspense>ginseng. Health risk assessment showed that the carcinogenic risks of intake of ginseng and forsythia in different age groups were negligible (ILCR was less than 10^{-6}), and the intake of licorice and rose had potential carcinogenic risks (ILCR ranged from 10^{-6} to 10^{-4}); the lifetime carcinogenic risk of different populations was in the order of adults>children>elderly>adolescents. The 6 kinds of Chinese medicinal materials were polluted to different extents by PAHs, and the carcinogenic risks caused by PAHs were liquorice>rose>rehmannia>glutinosa>eucommia ulmoides>forsythia suspensa>ginseng. **Conclusion** PAHs pollution is common in 6 kinds of medicinal and edible Chinese herbal medicines, which is harmful to people's health to some extent. This study uses a lifetime carcinogenic risk assessment model to make an early warning of PAHs pollution in medicinal and edible Chinese herbal medicines, which is helpful to the development and research of medicinal and edible foods with Chinese herbal medicines as raw materials, and provides a reference for formulating PAHs pollution control standards in Chinese herbal medicines.

KEY WORDS: medicinal and edible; Chinese herbal medicine; polycyclic aromatic hydrocarbons; carcinogenic risk assessment

0 引言

《“健康中国”2030 纲要》中提出要提高中医药养生保健服务能力,鼓励研发中医药功能类食品、传统食养产品等药食同源产品,在此战略背景下,中医药食品化成为未来应用发展的大趋势^[1]。药食同源食品是指以药食同源的中药材为原料制成的具有食养、保健等功能的食品^[2-3]。现阶段我国《既是食品又是药品的物品名单》且列入《中华人民共和国药典》(以下简称《中国药典》)的中药材有 102 种^[4],可用于保健食品的中药材原料有 114 种^[5]。药食两用食品作为进入市场消费者直面的一般食品,在食品研发过程中,其原料的质量安全是需要重点关注的问题。近年来,作为药食两用的中药材原料质量安全问题层出不穷,主要表现为残留污染物超标,例如农药^[6-8]、重金属^[9]、二氧化硫^[10]、多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)^[11-12]及其他环境污染物污染。但随着人们保健意识的增强,药食同源食品的食用更频繁,残留的有害物质对人体的暴露频率更高、暴露时间更持久,对人类健康带来的风险可能会更高。

PAHs 是目前已知最大的致癌物类别^[13],由于其固有的性质,广泛地存在于环境中,具有致癌、致畸和致突变性^[14],其中苯并[a]芘被国际癌症研究机构确定为 I 类致癌物^[15]。已有研究采用不同的检测方法对中药材中 PAHs 残留量进行测定^[16-18],结果表明中药材普遍存在 PAHs 污染,其总污染水平为 21.11~2856.00 ng/g ^[19],研究的侧重点主要在于对 PAHs 残留量的测定,对于人群膳食暴露风险评估鲜有报道,王亚琼等^[20]采用点评估的方法,对中药材中

PAHs 残留摄入风险进行了急慢性的膳食风险评价,而 PAHs 作为强致癌物,对其进行致癌风险评估,对于保障药食同源食品的安全性具有重要的意义。

本研究针对近 20 年国内外期刊报道的药食两用或可用作保健食品且记载于《中国药典》2020 版的中药材受 PAHs 污染的检测数据进行收集,选择通过实验检测获得的市售中药材中多环芳烃残留量的报道,筛选可药食两用或可作为保健食品原料的 6 种中药材,包括人参、甘草、地黄、杜仲、连翘、玫瑰花,其中人参、甘草、杜仲、玫瑰花收录于药食同源目录中;地黄是可作为保健食品的中药材原料;多项研究表明连翘不仅可以作为中药^[21-24],还可以应用于食品、保健等方面^[25-28],是具有很高利用价值的药食两用植物,2017 年原国家卫生和计划生育委员会批准了连翘叶作为新食品原料,属于药食同源植物^[29-30]。对这 6 种中药材受 PAHs 污染的数据进行统计分析和致癌风险评估,为制定中药材中多环芳烃污染控制标准提供参考依据,有利于以中药材为原料的药食同源食品的开发研究。

1 材料与方法

1.1 数据来源

本研究的数据将检索时间截止为 2022 年 1 月,关键词设为“中药材和多环芳烃”“中草药和多环芳烃”“中药和苯并[a]芘”“中药材污染”“中药材残留物”“中药材质量”等,在国内三大数据库(中国知网、万方、维普)以及外文数据库(PubMed、Elsevier、Web of Science、Springer)进行文献搜索,共获得 74 篇相关文献,涉及 69 种中药材多环芳烃

的测定。最终筛选检测频率高的 6 种中药材(人参、甘草、地黄、杜仲、连翘、玫瑰花), 其多环芳烃的检测数据量分别为 45、80、39、66、48、50, 使用 Excel 2010 进行统计分析, 计算每种中药材 PAHs 的含量范围、均值、苯并[a]芘毒性当量及致癌风险系数指标等。

1.2 超标率计算

目前, 我国尚未对中药材中 PAHs 残留量作出规定, 依据 GB 2762—2017《食品安全国家标准 食品中污染物限量》规定的食品中苯并[a]芘限量要求, 参照谷物、肉类、水产品及其制品, 苯并[a]芘的限量范围为: 5~10 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 依据此标准浓度, 对 6 种药食两用的中药材中苯并[a]芘污染超标情况进行分析。

1.3 健康风险评估

1.3.1 PAHs 毒性当量含量

PAHs 毒性当量评估是基于苯并[a]芘的致癌当量因子(toxic equivalency factors, TEF), 将其设定为 1^[31-33], 根据换算系数公式计算其他 PAHs 的毒性当量。本研究计算 6 种中药材 PAHs 的毒性等效浓度(TEQ_{BaP}), 计算公式见式(1)。

$$\text{TEQ}_{\text{BaP}} = \frac{C_i \times \text{TEF}_i}{1000} \quad (1)$$

式(1)中: TEQ_{BaP} 为 PAHs 换算苯并[a]芘的毒性当量, ng/kg ; C_i 为中药材中第 i 个 PAHs 的浓度, $\mu\text{g}/\text{kg}$; TEF _{i} 为第 i 个中药材中 PAHs 所对应的 TEF 值, 无量纲; 1000, 单位换算因子; 换算结果见表 1。

表 1 15 种 PAHs 的 TEF 值
Table 1 TEF values of 15 kinds of PAHs

多环芳烃	缩写	多环芳烃环数	致癌当量因子
萘	Nap	2	0.001
苊	Ace	3	0.001
芴	Flu	3	0.001
菲	Phe	3	0.001
蒽	Ant	3	0.1
荧蒽	Fln	4	0.001
芘	Pyr	4	0.001
苯并[a]蒽	BaA	4	0.1
蒎	Chr	4	0.01
苯并[b]荧蒽	BbF	5	0.1
苯并[k]荧蒽	BkF	5	0.1
苯并[a]芘	BaP	5	1
二苯并[a,h]蒽	DahA	5	5
苯并[g,h,i]芘	BghiF	6	0.01
茚并[1,2,3-c,d]芘	InP	6	0.1

1.3.2 致癌风险评估

依据 USA EPA 推荐的终生致癌风险(incremental

lifetime cancer risk, ILCR)评价模型, 评估中药材中 15 种 PAHs 对人群的健康危害, ILCR 低于 10^{-6} 被认为没有风险或其风险可以忽略, ILCR 在 10^{-6} ~ 10^{-4} 之间则被认为存在潜在的致癌风险, ILCR 大于 10^{-4} 时, 具有不可接受的致癌风险^[34-37], ILCR 公式见式(2)。

$$\text{ILCR} = \frac{\text{TEQ}_{\text{BaP}} \times \text{DR} \times \text{CSF} \times \text{EF} \times \text{ED}}{\text{BW} \times \text{AT} \times 10^6} \quad (2)$$

式(2)中: 考虑到中药材中多环芳烃的含量差异, TEQ_{BaP} 采用每种中药材的总体数据平均值; DR 为中药材的日摄入量, 根据 2015 年版《中国药典》规定的这 6 种中药材日用量, 取最大值作为日消费最大量; CSF 为 BaP 的膳食致癌斜率因子, 取平均值[7.3 $\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})$]^[38]; EF 为暴露频率, 取 365 d; ED 为暴露时间, 分 4 个年龄组, 儿童取 7, 青少年取 7, 老年人取 10^[39], 成年人取 43^[40-41]; BW 为人体的体重, 儿童、青年、成年、老年人分别为 24.1、51.1、63.1^[42]、55.6 kg ^[43]; AT 为致癌物的平均寿命, 取 25550 d^[44]; 10^6 , 单位换算因子。

2 结果与分析

2.1 药食两用中药材 PAHs 的污染情况

表 2 列出了 6 种中药材中 15 种 PAHs 的含量范围和检测均值, 由表 2 可知 6 种中药材中 PAHs 都有不同程度的检出, PHAs 总浓度范围为 nd~5400.99 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 平均值为 828.603 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。甘草、地黄、杜仲、玫瑰花中 15 种 PAHs 全部被检测出来, 从含量水平上看, 甘草、杜仲、连翘和玫瑰花中 Phe 的污染程度最高, 而人参和连翘中 BkF、BaP、DahA、BghiF、InP 未达到检测下限; 甘草、地黄 PHAs 含量最高的是 Ace, 甘草含量最低的是 BghiF, 地黄的 Flu 含量最低。

参照谷物、肉类、水产品、油脂及其制品中 BaP 的限量范围(5~10 $\mu\text{g}/\text{kg}$), 甘草中的 BaP 超过了最高限值, 超标率 60%; 地黄、杜仲、玫瑰花中 BaP 均有检出, 但未超过最低限值标准; 人参和连翘中未检出 BaP。6 种中药材 PAHs 的平均浓度顺序为: 甘草>杜仲>玫瑰花>地黄>连翘>人参。甘草的 PAHs 含量最高且 BaP 超标, 地黄、杜仲、玫瑰花的 BaP 虽然未超标, 但均有检出, 而 BaP 作为强致癌物, 其残留污染情况值得关注和加强监管。PAHs 在中药材中的分布随药材可食部位的不同呈现差异化, 一般而言, 叶和根、茎的残留污染含量最高, 其后依次为种子、花、果实, 原因可能是叶长时间暴露于环境中, 致使 PAHs 的积累, 而根、茎所含 PAHs 是通过土壤-根转移, 种子则是由于富含亲脂性化合物而导致 PAHs 的蓄积, 在本研究中地黄和人参作为根类中药材, PAHs 的含量较玫瑰花低, 可能的原因是选取的药材产地土壤中 PAHs 含量较低, 中药材根部受污染的程度较小。

表2 6种中药材中15种多环芳烃的污染水平($\mu\text{g}/\text{kg}$)
 Table 2 Contamination levels of 15 kinds of PAHs in 6 kinds of Chinese medicinal materials ($\mu\text{g}/\text{kg}$)

PAHs	人参 ^[2,45-46]		甘草 ^[11-12,17,46-47]		地黄 ^[17,47-48]		杜仲 ^[12,17,46,49]		连翘 ^[11,46,50]		玫瑰花 ^[12,17,47]	
	含量范围	均值	含量范围	均值	含量范围	均值	含量范围	均值	含量范围	均值	含量范围	均值
Nap	nd~10.13	2.575	nd~87.48	30.816	nd~45.20	16.4667	nd~265.30	76.795	nd~14.90	7.45	nd~39.00	25.5767
Acc	nd~7.70	3.20	nd~2206.48	442.596	nd~586.23	196.8433	nd~67.30	30.01	5.20~19.40	12.30	nd~522.40	183.11
Flu	nd~17.80	9.6825	nd~230.13	84.312	nd~5.20	1.7333	nd~988.50	285.05	11.10~74.60	42.85	nd~138.39	80.6633
Phe	nd~87.80	62.1575	nd~631.30	368.264	4.4~103.11	47.2367	nd~1622.22	617.98	32.70~280.70	156.70	86.78~435.20	211.46
Ant	nd~7.70	5.5175	nd~176.30	100.446	nd~7.76	2.72	nd~36.28	19.125	22.10~27.70	24.90	3.9~24.08	11.85
Fln	nd~29.00	19.2825	16~358.90	200.182	nd~19.13	6.3767	nd~166.10	79.693	23.30~36.50	29.90	nd~41.70	22.6533
Pyr	nd~25.90	19.4075	16~670.78	313.26	2.7~151.67	55.59	nd~282.00	132.725	25.00~58.50	41.75	nd~138.93	76.80
BaA	nd~2.47	0.6175	nd~227.60	107.82	nd~88.65	32.45	nd~10.38	6.618	6.40~8.40	7.40	nd~36.40	14.1267
Chr	nd~7.33	2.1825	nd~116.00	67.368	nd~15.57	8.4233	nd~17.35	9.845	10.10~11.10	10.60	nd~28.05	9.35
BbF	nd~4.03	1.0075	nd~648.05	203.83	nd~32.96	10.9867	nd~315.98	78.995	nd	0	nd~51.83	17.2767
BkF	nd	0	nd~168.45	44.424	nd~63.85	21.2833	nd~42.00	10.503	nd	0	nd~65.00	21.6667
BaP	nd	0	nd~27.60	13.89	nd~5.33	1.7767	nd~3.17	0.793	nd	0	nd~0.45	0.15
DahA	nd	0	nd~75.93	16.712	nd~13.83	4.61	nd~7.36	1.84	nd	0	nd~110.86	36.9533
BghiF	nd	0	nd~32.48	13.47	nd~19.96	6.6533	nd~9.75	2.438	nd	0	nd~18.61	6.2033
InP	nd	0	nd~20.37	13.526	nd~12.49	4.1633	nd~3.81	0.953	nd	0	nd~8.15	2.7167
Σ PAHs	nd~199.86	125.63	nd~5400.99	2020.916	31.4~1170.94	417.3133	nd~3837.5	1353.3575	135.9~531.8	333.85	90.68~1659.05	720.5567

注: nd 表示未检出。

2.2 PAHs 环类分布

6 种中药材中 PHAs 的环类分布见表 3。根据 PAHs 分子质量的高低及所含稠环数, 含有 4 个及 4 个以下的被称为轻质 PAHs, 含有 4 个以上的 PAHs 被称为重质 PAHs^[51]。表 3 中可知, 从 15 种 PAHs 单体组成特征来看, 人参 3 环 PAHs 最高, 4 环次之, 无 5 环和 6 环 PAHs; 甘草和地黄 PAHs 含量以 3 环、4 环、6 环为主, 2 环含量最低; 杜仲、连翘、玫瑰花中 3 环、4 环含量最高。人参、杜仲、连翘、玫瑰花中 3 环含量占比分别为 64.64%、70.36%、70.92%、67.60%, 这 4 种中药材的三环含量总和均超过了 50.00%, 说明中药材中 3 环 PAHs 占主要形态, 大分子 PAHs (5~6 环) 含量占比为 16.00%, 该结果与 ISHIZAKI 等^[11]和 ZHAN 等^[52]报道的结果一致, 即中药材中检出的

PAHs 以小分子轻质为主。

2.3 健康风险评估

2.3.1 PAHs 毒性分布

6 种中药材基于 BaP 的毒性当量结果见表 4。从毒性水平上看, 6 种中药材中人参和连翘中 Ant 的毒性水平最高, 由于 DahA 致癌当量因子 TEF 最高, TEQ_{BaP} (AVG) 的计算值会相对较大, 甘草、地黄、杜仲和玫瑰花中 DahA 的 TEQ_{BaP} (AVG) 分别达 83560.00、23050.00、9200.00、184766.67 ng/kg。而甘草、地黄、杜仲、玫瑰花检出 BaP 含量, BaP 的毒性当量分别占其总量的 9.47%、5.47%、3.45%、0.08%, 虽然占比均在 10% 以下, 这也可能是在控制食品中 PAHs 含量方面, 我国将 BaP 作为控制目标的依据之一的原因。

表 3 6 种中药材 15 种 PAHs 环类分布平均含量(μg/kg)
Table 3 Distribution average content of 15 kinds of PAHs in 6 kinds of Chinese medicinal materials (μg/kg)

PAHs	人参	甘草	地黄	杜仲	连翘	玫瑰花
ΣPAHs (2C)	2.58	30.82	16.47	76.80	7.45	25.58
ΣPAHs (3C)	80.56	995.62	248.53	952.16	236.75	487.08
ΣPAHs (4C)	41.49	688.63	102.84	228.88	89.65	122.93
ΣPAHs (5C)	0.00	278.86	38.66	92.13	0.00	76.05
ΣPAHs (6C)	0.00	967.49	141.50	3.39	0.00	8.92

注: ΣPAHs (2C) 为二环的 PAHs, 以此类推。

表 4 6 种中药材中 PAHs 基于 BaP 的毒性当量(ng/kg)
Table 4 BaP-based toxic equivalents of PAHs in 6 kinds of Chinese medicinal medicines (ng/kg)

PAHs	人参		甘草		地黄		杜仲		连翘		玫瑰花	
	TEQ _{BaP} (AVG)	TEQ _{BaP} (MAX)	TEQ _{BaP} (AVG)	TEQ _{BaP} (MAX)	TEQ _{BaP} (AVG)	TEQ _{BaP} (MAX)	TEQ _{BaP} (AVG)	TEQ _{BaP} (MAX)	TEQ _{BaP} (AVG)	TEQ _{BaP} (MAX)	TEQ _{BaP} (AVG)	TEQ _{BaP} (MAX)
Nap	2.58	10.13	30.82	87.48	16.47	45.20	76.80	265.30	7.45	14.90	25.58	39.00
Ace	3.20	7.70	442.60	2206.48	196.84	586.23	30.01	67.30	12.30	19.40	183.11	522.40
Flu	9.68	17.80	84.31	230.13	1.73	5.20	285.05	988.50	42.85	74.60	80.66	138.39
Phe	62.16	87.80	368.26	631.30	47.24	103.11	617.98	1622.22	156.70	280.70	211.46	435.20
Ant	551.75	770.00	10044.60	17630.00	272.00	776.00	1912.50	3628.00	2490.00	2770.00	1185.00	2408.00
Fln	19.28	29.00	200.18	358.90	6.38	19.13	79.69	166.10	29.90	36.50	22.65	41.70
Pyr	19.41	25.90	313.26	670.78	55.59	151.67	132.73	282.00	41.75	58.50	76.80	138.93
BaA	61.75	247.00	10782.00	22760.00	3245.00	8865.00	661.75	1038.00	740.00	840.00	1412.67	3640.00
Chr	21.83	73.30	673.68	1160.00	84.23	155.70	98.45	173.50	106.00	111.00	93.50	280.50
BbF	100.75	403.00	20383.00	64805.00	1098.67	3296.00	7899.50	31598.00	0.00	0.00	1727.67	5183.00
BkF	0.00	0.00	4442.40	16845.00	2128.33	6385.00	1050.25	4200.00	0.00	0.00	2166.67	6500.00
BaP	0.00	0.00	13890.00	27600.00	1776.67	5330.00	792.50	3170.00	0.00	0.00	150.00	450.00
DahA	0.00	0.00	83560.00	379650.00	23050.00	69150.00	9200.00	36800.00	0.00	0.00	184766.67	554300.00
BghiF	0.00	0.00	134.70	324.80	66.53	199.60	24.38	97.50	0.00	0.00	62.03	186.10
InP	0.00	0.00	1352.60	2037.00	416.33	1249.00	95.25	381.00	0.00	0.00	271.67	815.00

注: TEQ_{BaP} (AVG): 每个 PAHs 平均含量所对应的毒性当量; TEQ_{BaP} (MAX): 单个 PAHs 含量最高时所对应的毒性当量。

2.3.2 致癌风险评估

6 种中药材 PAHs 污染的 ILCR 评价结果见表 5。不同年龄组摄入人参、连翘的致癌风险可以忽略(ILCR 小于 10^{-6}), 摄入甘草、玫瑰花存在潜在的致癌风险(ILCR 在 10^{-6} ~ 10^{-4} 之间); 成年人食用地黄和杜仲有潜在的致癌风险, 而儿童、青少年、老年人食用地黄和杜仲的致癌风险可以忽略。就不同的年龄组分析, 4 个年龄段的终生致癌风险大小顺序为: 成年人>儿童>老年人>青少年, 4 类人群中成年人摄入中药材引起的致癌风险最高, 因为成年人的膳食暴露时间最长, 而儿童的体重较青少年低, 儿童食用中药材的致癌风险相对较高, 有研究发现儿童对于产生健康风险的污染物会更加敏感, 儿童的健康问题应得到更多的重视^[53]。从 6 种中药材受多环芳烃污染的程度不同, 所引起的致癌风险的顺序为: 甘草>玫瑰花>地黄>杜仲>连翘>人参, 说明人群食用甘草和玫瑰花为原材料的药食同源食品的致癌风险较高, 应该加强以甘草和玫瑰花为原材料的药食同源食品 PAHs 残留污染的检测和管控。

3 结论

本研究中, 药食两用的 6 种中药材 PAHs 都有不同程度的检出, 其中甘草、地黄、杜仲、玫瑰花中 15 种 PAHs 全部被检测出来, 表明多种来源的中药材样本均存在 PAHs 的污染, PAHs 的单体组成以 3 环和 4 环为主, 单体的分布在一定程度上预示了其潜在的来源, 3 环和 4 环占优势, 说明其可能污染来源于石油和高温燃烧。中药材中 PAHs

可以通过环境吸收和富集, 也可以在植物体内传输和迁移转化, 且在加工生产中也可能生成 PAHs, 所以中药材中 PAHs 残留量的影响因素是复杂多样的, PAHs 的来源有较强的不确定性, 需要进一步深入研究。在实际生活中, 人们在食用以中药材为主要原料的食品时, 会增加中药材食用的种类, 因此即使单一的中药材 PAHs 污染膳食暴露风险可接受, 不代表多种中药材联合食用带来的健康风险也是安全的; 除此之外, 每一种中药材食用的方法、食用频率和食用量都不相同, 不同人群也存在个体差异, 不同中药材摄入人体后产生的影响也不尽相同, 所以本研究的健康风险分析结果可能与实际存在一些差异。中药材作为药食两用食品和保健类食品的主要原料, 保障中药材的质量成为确保药食两用食品安全性的核心环节, 目前, 《中国药典》2020 年版规定了中药材及其饮片中药农残留限量、重金属污染物限量, 在 GB 2762—2017 中规定了 BaP 在各类食品中的最高限量, 但尚没有相关法律和标准规定中药材中优先控制的 PAHs 残留污染限量, 应进一步完善 PAHs 的检测方法和判定依据。

本研究采用终生致癌风险评估模型, 对药食两用的 6 种植物性中药材受 PAHs 污染情况进行致癌风险评估, 结果表明不同年龄组摄入甘草、玫瑰花存在潜在的致癌健康风险, 成年人食用地黄和杜仲也存在潜在的致癌风险, 应该加强中药材 PAHs 残留污染限量监管, 保障以中药材为原料的药食两用食品的食用安全。

表 5 6 种中药材 PAHs 污染的 ILCR
Table 5 ILCR of PAHs contamination in 6 kinds of traditional Chinese medicinal materials

年龄段	人参	甘草	地黄	杜仲	连翘	玫瑰花
儿童	1.5×10^{-8}	2.9×10^{-6}	9.8×10^{-7}	4.6×10^{-7}	1.1×10^{-7}	2.3×10^{-6}
青少年	7.3×10^{-9}	1.4×10^{-6}	4.6×10^{-7}	2.2×10^{-7}	5.1×10^{-8}	1.1×10^{-6}
成年人	3.6×10^{-8}	6.9×10^{-6}	2.3×10^{-6}	1.1×10^{-6}	2.6×10^{-7}	5.5×10^{-6}
老年人	9.6×10^{-9}	1.8×10^{-6}	6.1×10^{-7}	2.9×10^{-7}	6.8×10^{-8}	1.4×10^{-6}

参考文献

- [1] 刘超群, 任越, 张燕玲. 药食同源食品质量控制的研究现状及策略 [J/OL]. 中国中药杂志, [2022-03-31]. DOI: 10.19540/j.cnki.cjmm.20220322.601
LIU CQ, REN Y, ZHANG YL. Research status and strategies of quality control of medicine-food homology food [J/OL]. China J Chin Mater Med, [2022-03-31]. DOI: 10.19540/j.cnki.cjmm.20220322.601
- [2] 贾慧杰. 我国药食同源的发展与应用概况分析[J]. 现代食品, 2022, 28(4): 33-35.
JIA HJ. Development and application of homology of medicine and food in China [J]. Mod Food, 2022, 28(4): 33-35.
- [3] 陈姣, 游宇, 廖婉, 等. 药食同源中药青果的保健功效及现代应用探析 [J]. 中草药, 2021, 52(20): 6442-6454.
CHEN J, YOU Y, LIAO W, *et al.* Analysis on health care effect and modern application of Chinese traditional medicine Qingguo [J]. Chin Tradit Herb Drug, 2021, 52(20): 6442-6454.
- [4] 唐雪阳, 谢果珍, 周融融, 等. 药食同源的发展与应用概况[J]. 中国现代中药, 2020, 22(9): 1428-1433.
TANG XY, XIE GZ, ZHOU RR, *et al.* Development and application of homology of medicine and food [J]. Mod Chin Med, 2020, 22(9): 1428-1433.
- [5] 王林元, 张建军, 王淳, 等. 对中药类保健食品的认识及研究开发策略 [J]. 中国中药杂志, 2016, 41(21): 3927-3930.
WANG LY, ZHANG JJ, WANGN C, *et al.* Understanding and research and development strategy of Chinese medicine health food [J]. China J Chin Mater Med, 2016, 41(21): 3927-3930.
- [6] HARRIS ESJ, CAO S, LITTLEFIELD BA, *et al.* Heavy metal and pesticide content in commonly prescribed individual raw Chinese herbal medicines [J]. Sci Total Environ, 2011, 409(20): 4297-4305.

- [7] WANG Y, GOU Y, ZHANG L, *et al.* Levels and health risk of pesticide residues in Chinese herbal medicines [J]. *Frontiers Pharmacol*, 2021, 12: 818268.
- [8] TONG H, TONG Y, XUE J, *et al.* Multi-residual pesticide monitoring in commercial Chinese herbal medicines by gas chromatography-triple quadrupole tandem mass spectrometry [J]. *Food Anal Methods*, 2014, 7(1): 135–145.
- [9] YANG CM, CHIEN MY, CHAO PC, *et al.* Investigation of toxic heavy metals content and estimation of potential health risks in Chinese herbal medicine [J]. *J Hazard Mater*, 2021, 412: 125142.
- [10] 曹扬, 赵琨, 钟霖. 几种药食同源食品中二氧化硫残留分析与健康风险评估[J]. *食品工业*, 2021, 42(7): 124–128.
- CAO Y, ZHAO K, ZHONG L. Analysis and health risk assessment of sulfur dioxide residue in several kinds of medicine-food homologous foods [J]. *Food Ind*, 2021, 42(7): 124–128.
- [11] ISHIZAKI A, SITO K, KATAOKA H. Analysis of contaminant polycyclic aromatic hydrocarbons in tea products and crude drugs [J]. *Anal Methods*, 2011, 3(2): 299–305.
- [12] YU L, CAO Y, ZHANG J, *et al.* Isotope dilution-GC-MS/MS analysis of 16 polycyclic aromatic hydrocarbons in selected medicinal herbs used as health food additives [J]. *Food Addit Contam A*, 2012, 29(11): 1800–1809.
- [13] PATEL AB, SHAIKH S, JAIN KR, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons: Sources, toxicity, and remediation approaches [J]. *Front Microbiol*, 2020, 11: 562813.
- [14] 刘丹青, 朱梦杰, 汤琳. 多环芳烃的健康风险评价以及暴露参数的敏感性分析[J]. *中国环境监测*, 2019, 35(1): 75–82.
- LIU DQ, ZHU MJ, TANG L. Health risk assessment and sensitivity analysis of exposure parameters of polycyclic aromatic hydrocarbons [J]. *Environ Monit Chin*, 2019, 35(1): 75–82.
- [15] ABDEL-SHAIFY HI, MANSOUR MSM. A review on polycyclic aromatic hydrocarbons: Source, environmental impact, effect on human health and remediation [J]. *Egypt J Petrol*, 2016, 25(1): 107–123.
- [16] 金红宇, 范可青, 许玮仪, 等. 同位素内标-气相色谱串联质谱法测定中药材中多环芳烃残留量[J]. *中国药理学杂志*, 2015, 50(2): 115–119.
- JIN HY, FAN KQ, XU WY, *et al.* Determination of PAHs residues in Chinese medicinal materials by isotope internal standard gas chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Chin Pharmacol J*, 2015, 50(2): 115–119.
- [17] 王宏伟, 方波, 张磊, 等. HPLC 法同时测定 9 种中草药中 18 种多环芳烃残留量[J]. *中成药*, 2020, 42(4): 986–990.
- WANG HW, FANG B, ZHANG L, *et al.* Simultaneous determination of 18 polycyclic aromatic hydrocarbons residues in 9 Chinese herbal medicines by HPLC [J]. *Chin Tradit Pat Med*, 2020, 42(4): 986–990.
- [18] 王月茹, 唐志书, 宋忠兴, 等. 固相微萃取-气相串联质谱法测定葛根药材中多环芳烃残留量[J]. *中国现代中药*, 2017, 19(2): 221–225.
- WANG YR, TANG ZS, SONG ZX, *et al.* Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons residues in *Radix puerariae* by solid phase microextraction and gas phase tandem mass spectrometry [J]. *Mod Chin Med*, 2017, 19(2): 221–225.
- [19] 崔宗岩, 葛娜, 曹彦忠, 等. 市售植物源中药材的多环芳烃污染现状与评价[J]. *环境化学*, 2014, 33(5): 844–849.
- CUI ZY, GE N, CAO YZ, *et al.* Pollution status and evaluation of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in medicinal herbs of commercial plant origin [J]. *Environ Chem*, 2014, 33(5): 844–849.
- [20] 王亚琼, 钟水生, 张华锋, 等. 中药材中多环芳烃的残留量测定及风险评估[J]. *安徽医药*, 2022, 26(3): 466–470.
- WANG YQ, ZHONG SS, ZHANG HF, *et al.* Determination and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons residues in Chinese medicinal materials [J]. *Anhui Med Pharm J*, 2022, 26(3): 466–470.
- [21] WANG Z, XIA Q, LIU X, *et al.* Phytochemistry, pharmacology, quality control and future research of *Forsythia suspensa* (Thunb.) Vahl: A review [J]. *J Ethnopharmacol*, 2018, 210: 318–339.
- [22] COON TA, MCKEIVEY AC, WEATHINGTON NM, *et al.* Novel PDE4 inhibitors derived from Chinese medicine forsythia [J]. *PLoS One*, 2014, 9(12): e115937.
- [23] LIANG C, HUI N, LIU Y, *et al.* Insights into forsythia honeysuckle (Lianhuaqingwen) capsules: A Chinese herbal medicine repurposed for COVID-19 pandemic [J]. *Phytomed Plus*, 2021, 1(2): 100027.
- [24] YU B, ZHANG D, TAN LH, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in traditional Chinese medicines: An analytical method based on different medicinal parts, levels, distribution, and sources [J]. *RSC Adv*, 2017, 7(8): 4671–4680.
- [25] 邱智军, 原江锋, 张国庆, 等. 连翘叶中连翘苷和连翘酯苷 A 对食用油脂的抗氧化活性[J]. *食品科学*, 2015, 36(17): 39–42.
- QIU ZJ, YUAN JF, ZHANG GQ, *et al.* Antioxidant activities of forsythiin and forsythiin A from the leaves of *Forsythia suspensa* on edible oils [J]. *Food Sci*, 2015, 36(17): 39–42.
- [26] 孙倩倩, 姜子涛, 李荣. 天然防腐剂连翘精油的研究进展[J]. *中国食品添加剂*, 2012, (1): 222–226.
- SUN QQ, JIANG ZT, LI R. Research progress of natural preservative forsythia essential oil [J]. *Chin Food Addit*, 2012, (1): 222–226.
- [27] 陈兰英, 许航, 徐正刚, 等. 生境对药食两用植物接骨草的生长、叶绿素含量与叶绿素荧光特性的影响[J]. *生态科学*, 2021, 40(5): 69–77.
- CHEN LY, XU H, XU ZG, *et al.* Effects of different habitats on the growth, chlorophyll content and chlorophyll fluorescence characteristics of medicinal and edible plants *Sambucus chinensis* Lind. [J]. *Ecol Sci*, 2021, 40(5): 69–77.
- [28] 杨丽霞, 梁正辉, 郭政港. 连翘叶复合袋泡茶制备及配方优化[J]. *山西农业大学学报(自然科学版)*, 2021, 41(3): 1–8.
- YANG LX, LANG ZH, GUO ZG. Preparation and formulation optimization of forsythia leaf compound tea bag [J]. *J Shanxi Agric Univ (Nat Sci Ed)*, 2021, 41(3): 1–8.
- [29] 童红梅, 赵剑鸣. 连翘、丁香、川芎复合涂膜保鲜剂对杏子果实采后品质及适宜保鲜浓度筛选[C]. *中国生物化学与分子生物学会 2019 年全国学术会议暨学会成立四十周年论文集*, 2019.
- TONG HM, ZHAO JM. Screening of forsythia, clove and ligusticum chuanxiong composite coating preservative for apricot fruit post-harvest quality and suitable preservative concentration [C]. *Chinese Society of Biochemistry and Molecular Biology 2019 National Conference and the 40th anniversary of the establishment of the society proceedings*, 2019.
- [30] 杨乔. 杜仲叶和桑叶两种保健功能型茯茶加工工艺研究[D]. 咸阳: 西北农林科技大学, 2019.
- YANG Q. Research on the processing techniques of two types of health-care functional fu teas added with *Eucommia ulmoides* and mulberry leaves respectively [D]. Xianyang: Northwest Agriculture and Forestry University, 2019.
- [31] SUMAN S, SINHA A, TARAFDAE A. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) concentration levels, pattern, source identification and soil toxicity assessment in urban traffic soil of Dhanbad, India [J]. *Sci Total Environ*, 2016, 545–546(68): 353–360.
- [32] AIHARBI OML, BASHEER AA, KHATTAB RA, *et al.* Health and environmental effects of persistent organic pollutants [J]. *J Mol Liq*, 2018, 263: 442–453.

- [33] WEI C, HAN Y, BANDOWE BAM, *et al.* Occurrence, gas/particle partitioning and carcinogenic risk of polycyclic aromatic hydrocarbons and their oxygen and nitrogen containing derivatives in Xi'an, central China [J]. *Sci Total Environ*, 2015, 505: 814–822.
- [34] 彭驰, 王美娥, 欧阳志云, 等. 北京科教园区绿地土壤中多环芳烃的残留特征与潜在风险[J]. *环境科学*, 2012, 33(2): 592–598.
- PENG C, WANG ME, OUYANG ZY, *et al.* Characterization and potential risks of polycyclic aromatic hydrocarbons in green space soils of educational areas in Beijing [J]. *Environ Sci*, 2012, 33(2): 592–598.
- [35] 刘庚, 毕如田, 王世杰, 等. 某焦化场地土壤多环芳烃污染数据的统计特征[J]. *应用生态学报*, 2013, 24(6): 1722–1728.
- LIU G, BI RT, WANG SJ, *et al.* Statistical characteristics of soil polycyclic aromatic hydrocarbons pollution data in a coking site [J]. *Chin J Appl Ecol*, 2013, 24(6): 1722–1728.
- [36] 刘新, 王东红, 马梅, 等. 中国饮用水中多环芳烃的分布和健康风险评价[J]. *生态毒理学报*, 2011, 6(2): 207–214.
- LIU X, WANG DH, MA M, *et al.* Distribution and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in drinking water in China [J]. *Asian J Ecotoxicol*, 2011, 6(2): 207–214.
- [37] 孙焰, 祁士华, 李绘, 等. 福建闽江沿岸土壤中多环芳烃含量、来源及健康风险评价[J]. *中国环境科学*, 2016, 36(6): 1821–1829.
- SUN Y, QI SH, LI H, *et al.* Content, source and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in soil along Minjiang River, Fujian Province [J]. *Chin Environ Sci*, 2016, 36(6): 1821–1829.
- [38] ZHAO Z, ZHANG L, CAI Y, *et al.* Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) residues in several tissues of edible fishes from the largest freshwater lake in China, Poyang Lake, and associated human health risk assessment [J]. *Ecotoxicol Environ Saf*, 2014, 104(2): 323–331.
- [39] WAQAS M, KHAN S, CHAO C, *et al.* Quantification of PAHs and health risk via ingestion of vegetable in Khyber Pakhtunkhwa Province, Pakistan [J]. *Sci Total Environ*, 2014, 497: 448–458.
- [40] NIE J, SHI J, DUAN X, *et al.* Health risk assessment of dietary exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in Taiyuan, China [J]. *J Environ Sci*, 2014, 26(2): 432–439.
- [41] 殷婧, 夏忠欢, 周彦池, 等. 临汾市售蔬菜中多环芳烃污染特征及致癌风险分析[J]. *生态毒理学报*, 2016, 11(3): 265–271.
- YIN J, XIA ZH, ZHOU YC, *et al.* Pollution characteristics and carcinogenic risk analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in vegetables sold in Linfen City [J]. *Asian J Ecotoxicol*, 2016, 11(3): 265–271.
- [42] MA WL, LIU LY, QI H, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in water, sediment and soil of the Songhua River Basin, China [J]. *Environ Monit Assess*, 2013, 185(10): 8399–8409.
- [43] 常明, 王贝贝, 赵秀阁, 等. 湖南某地饮用水中多环芳烃的健康风险评价[J]. *环境科学研究*, 2014, 27(8): 904–909.
- CHANG M, WANG BB, ZHAO XG, *et al.* Health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in drinking water in a city in Hunan Province [J]. *Res Environ Sci*, 2014, 27(8): 904–909.
- [44] TARAFDAR A, CHAWADA S, SINHA A. Health risk assessment from polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) present in dietary components: A meta-analysis on a global scale [J]. *Polycycl Aromat Comp*, 2018. DOI: 10.1080/10406638.2018.1492426
- [45] YU L, CUI Z, CAO Y, *et al.* Investigation of 15 polycyclic aromatic hydrocarbons in selected medicinal herbs used as health food additives by ultra-performance liquid chromatography [J]. *J Liq Chromatogr Relat Technol*, 2015, 38(20): 1783–1788.
- [46] CUI Z, GE N, ZHANG A, *et al.* Comprehensive determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in Chinese herbal medicines by solid phase extraction and gas chromatography coupled to tandem mass spectrometry [J]. *Anal Bioanal Chem*, 2015, 407(7): 1989–1997.
- [47] ZHOU DB, HAN F, DING L, *et al.* Magnetic C60 nanospheres based solid-phase extraction coupled with isotope dilution gas chromatography-mass spectrometry method for the determination of sixteen polycyclic aromatic hydrocarbons in Chinese herbal medicines [J]. *J Chromatogr B*, 2020, 1144: 122076.
- [48] SHI Z, YAN J, MA Y, *et al.* Cloud point extraction-HPLC determination of polycyclic aromatic hydrocarbons residues in traditional Chinese medicinal herbs [J]. *Proc Environ Sci*, 2011, 10: 1216–1221.
- [49] GUO X, ZHANG W, GU J, *et al.* The determination of the level, source, and risk of polycyclic aromatic hydrocarbon content in traditional Chinese medicines using a QuEChERS based extraction and HPLC-UV-FLD analysis [J]. *J Liq Chromatogr Relat Technol*, 2021, 44(3–4): 210–219.
- [50] 郭佳佳. 连翘不同居群的生长特征及其对多环芳烃污染的响应[D]. 山西: 山西师范大学, 2019.
- GUO JJ. Growth characteristics of different populations of *Forsythia suspensa* and their response to polycyclic aromatic hydrocarbon pollution [D]. Shanxi: Shanxi Normal University, 2019.
- [51] 肖静, 严志宏, 姚雪莲, 等. 多环芳烃污染在中药中的存在及分析方法研究进展[J/OL]. *中成药*: [2022-03-26]. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/31.1368.R.20220120.1038.008.html>
- XIAO J, YAN ZH, YAO XL, *et al.* Research progress of polycyclic aromatic hydrocarbon contamination in traditional Chinese medicine and analytical methods [J/OL]. *Chin Tradit Pat Med*: [2022-03-26]. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/31.1368.R.20220120.1038.008.html>
- [52] ZHAN XH, MA HL, ZHOU LX, *et al.* Accumulation of phenanthrene by roots of intact wheat (*Triticum aestivum* L.) seedlings: Passive or active uptake? [J]. *BMC Plant Biol*, 2010, 10(1): 1–8.
- [53] 徐小涛, 韩桥, 王明仕, 等. 安阳市大型工业区和周围社区土壤中重金属污染特征及健康风险评价[J]. *地球与环境*, 2021, 49(5): 551–560.
- XU XT, HAN Q, WANG MS, *et al.* Characteristics and health risk assessment of heavy metal pollution in soils of large industrial areas and surrounding communities in Anyang City [J]. *Earth Environ*, 2021, 49(5): 551–560.

(责任编辑: 张晓寒 郑 丽)

作者简介



曹德艳, 硕士, 主要研究方向为食品安全与卫生。

E-mail: jolly2025@163.com



朱美霖, 博士, 副教授, 主要研究方向为食品安全与卫生。

E-mail: jay70281@163.com