

辽宁省稻田养殖中华绒螯蟹中可食部分砷的含量特征及食用安全评价

夏邦华^{1,2}, 黄晓丽¹, 高磊¹, 王鹏¹, 郝其睿¹, 陈中祥¹, 汤施展¹,
白淑艳¹, 杜宁宁¹, 韩英^{2*}, 覃东立^{1,3*}

(1. 中国水产科学研究院黑龙江水产研究所, 哈尔滨 150070; 2. 东北农业大学动物科学技术学院, 哈尔滨 150030;
3. 农业农村部水产品质量安全控制重点实验室, 北京 100141)

摘要: **目的** 评价稻田养殖中华绒螯蟹体内砷的污染水平和膳食风险。**方法** 从辽宁省盘锦市和鞍山市采集了 560 份样本, 采用电感耦合等离子体质谱仪和高效液相色谱-原子荧光法测定了肌肉、肝胰腺及性腺总砷和总无机砷[As(III)和 As(V)]的含量, 并利用目标危险商数(target hazard quotient, THQ)和致癌风险(cancer risk, CR)来评价对人体的健康风险。**结果** 中华绒螯蟹中总砷均值呈现雌蟹肝胰腺与性腺>雄蟹肝胰腺与性腺>雄蟹肌肉>雌蟹肌肉的趋势, 其中雄蟹肌肉与雌蟹肝胰腺及性腺总砷均值之间有显著性差异($P<0.05$), 雌蟹肌肉与肝胰腺及性腺总砷均值之间具有显著差异($P<0.05$); 总无机砷均值呈现雌蟹肝胰腺与性腺>雄蟹肝胰腺与性腺>雌蟹肌肉>雄蟹肌肉的趋势, 总无机砷含量仅占总砷含量的 5.014%~6.250%; 盘锦市盘山县大洼区和胡家镇梁家村几个采样点的总砷和总无机砷含量相较于其他地区偏高, 而其余的采样点总砷和总无机砷含量处在一个相对较低的水平; 稻田养殖中华绒螯蟹所有样品的 THQ 值远低于 1, CR 值在 10^{-6} 和 10^{-4} 之间, 经判别仅具有低致癌风险(level II)。**结论** 稻田养殖中华绒螯蟹不会对消费者造成潜在的健康危害。

关键词: 中华绒螯蟹; 稻田养殖; 总砷; 总无机砷; 食用安全评价

Characterization of arsenic and evaluation of food safety in the edible fraction of *Eriocheir sinensis* cultured in rice fields in Liaoning Province

XIA Bang-Hua^{1,2}, HUANG Xiao-Li¹, GAO Lei¹, WANG Peng¹, HAO Qi-Rui¹, CHEN Zhong-Xiang¹,
TANG Shi-Zhan¹, BAI Shu-Yan¹, DU Ning-Ning¹, HAN Ying^{2*}, QIN Dong-Li^{1,3*}

(1. Heilongjiang River Fishery Research Institute Chinese Academy of Fishery Sciences, Harbin 150070, China; 2. College of Animal Science and Technology, Northeast Agricultural University, Harbin 150030, China; 3. Key Laboratory of Control of Quality and Safety for Aquatic Products, Ministry of Agriculture, Beijing 100141, China)

ABSTRACT: Objective To evaluate the level of arsenic contamination and dietary risk in rice-farmed *Eriocheir sinensis*. **Methods** In this study, 560 samples were collected from Panjin and Anshan Cities of Liaoning Province, and

基金项目: 国家重点研发计划项目(2020YFD0900301)

Fund: Supported by the National Key Research and Development Program of China (2020YFD0900301)

*通信作者: 韩英, 教授, 主要研究方向为水产动物遗传育种。E-mail: hanyingzou@neau.edu.cn

覃东立, 研究员, 主要研究方向为渔业环境及水产品质量安全。E-mail: qdl978@163.com

*Corresponding author: HAN Ying, Professor, College of Animal Science and Technology, Northeast Agricultural University, Harbin 150030, China. E-mail: hanyingzou@neau.edu.cn

QIN Dong-Li, Professor, Heilongjiang River Fishery Research Institute Chinese Academy of Fishery Sciences, Harbin 150070, China. E-mail: qdl978@163.com

the levels of total arsenic and total inorganic arsenic [As(III) and As(V)] in muscle, hepatopancreas and gonads were determined by inductively coupled plasma mass spectrometry and liquid chromatography-atomic fluorescence, respectively, and the target hazard quotient (THQ) and carcinogenic risk (CR) were used to evaluate the health risk to humans. **Results** The mean values of total arsenic in *Eriocheir sinensis* showed a trend of female crab hepatopancreas and gonads>male crab hepatopancreas and gonads>male crab muscle>female crab muscle, where there was a significant difference between the mean values of total arsenic in male muscle and female hepatopancreas and gonads ($P<0.05$), while there was a significant difference between the mean values of total arsenic in female muscle and hepatopancreas and gonads ($P<0.05$). The mean values of total inorganic arsenic showed a trend of female crab hepatopancreas and gonads>male crab hepatopancreas and gonads>female crab muscles>male crab muscles, and the total inorganic arsenic content only accounted for 5.014%–6.250% of the total arsenic content; the total arsenic and total inorganic arsenic content at several sampling sites in Dawa District and Liangjia Village, Hujia Town, Panshan County, Panjin City were relatively high compared to other areas, while the total arsenic and total inorganic arsenic content at the rest of the sampling sites were at a relatively low level. The THQ values for all samples of rice-farmed *Eriocheir sinensis* were well below 1 and the CR values were between 10^{-6} and 10^{-4} , which were judged to be of low carcinogenic risk (level II) only.

Conclusion The farming of *Eriocheir sinensis* in rice fields does not pose a potential health hazard to consumers.

KEY WORDS: *Eriocheir sinensis*; rice-farming; total arsenic; total inorganic arsenic; food safety assessment

0 引言

中华绒螯蟹(*Eriocheir sinensis*)俗称河蟹、大闸蟹、毛蟹^[1],因肉质鲜美,富含多种不饱和脂肪酸^[2],深受消费者喜爱。中华绒螯蟹在我国有池塘养殖、大中水面养殖和稻蟹综合种养等几种模式,其中稻蟹综合种养模式主要分布于我国三北地区以及江苏、上海、天津等沿海省市。根据 2021 年《中国渔业统计年鉴》^[3]和《2020 中国稻渔综合种养产业发展报告》^[4]提供的数据测算,辽宁省盘锦市稻蟹种养面积为 48000 hm²,约占全国稻蟹种养总面积的 32%。2020 年,我国稻田养殖中华绒螯蟹(以下简称“稻田蟹”)产量超过 6 万 t^[5],其食用安全受到消费者密切关注。稻田蟹养殖中不可避免的会受到水稻生长过程中所用化肥的影响,而这些化肥中往往含有一定量的砷,有研究表明磷肥中通常含有 20~50 mg/kg 的砷^[6],这些含砷肥料的长期使用会在土壤中蓄积过量的砷^[7],进而影响稻田蟹的养殖水环境。砷是自然界中广泛分布的一种环境污染物,具有很强的毒性,可与肌体细胞中的酶结合,并使之失活造成代谢障碍^[8],从而影响人体的免疫情况^[9]。2017 年,世界卫生组织国际癌症研究机构公布的致癌物清单将砷列在一类致癌物^[10]。砷可分为有机砷和无机砷两大类,通常认为有机砷是低毒或者无毒的,而无机砷是砷元素化合物致畸、致癌及致突变的主要来源^[11-13]。砷甜菜碱(arsenobetaine, AsB)是水产品中最主要的有机砷形态,有研究表明 AsB 化学性质较为稳定,毒性极弱^[14];而无机砷的毒性较强,其中 As(III)主要通过与细胞中大分子的巯基结合而产生毒性效应,As(V)则主要是取代磷酸,竞争磷酸化偶联而产生毒性^[15]。总而言之,砷化物中毒的机制主要是通过诱导

脂质过氧化、影响蛋白质和酶的结构和活性、与核酸分子相互作用以及诱导细胞凋亡等^[16]。在稻田蟹综合种养过程中,土壤里的微生物会利用 As(V)作为电子受体进行新陈代谢^[17],将 As(V)转化为 As(III),而 As(III)被土壤颗粒吸附的能力较弱,会进一步引起水环境中砷含量的增加^[18]。砷在中华绒螯蟹体内器官的累积程度取决于器官的生理作用,肝胰腺作为中华绒螯蟹体内的代谢解毒器官被认为是金属蓄积的靶器官,这也是肝胰腺对总砷的富集能力高于肌肉的主要原因。齐自元等^[19]对中华绒螯蟹不同可食组织砷元素分布特征分析结果表明,肝胰腺的总砷含量要显著高于肌肉中的总砷含量($P<0.05$);叶洪等^[20]在对福建海域养殖海参重金属含量的分析及评价中发现,养殖海参的消化道和呼吸树中砷含量较高,与海参体壁的砷含量差异较大。甲壳类对砷的生物富集作用较强,海水蟹和淡水蟹体内均有较高的砷含量^[21]。为探究中华绒螯蟹体内砷对食品安全的影响,有学者开展了中华绒螯蟹体内砷形态的分布特征及膳食风险评估方面的研究,研究主要集中在湖泊和池塘养殖的中华绒螯蟹^[22]。稻田蟹因生活环境相对特殊,更易受到环境中污染物的影响,并且国内外对稻田蟹体内砷含量的研究相对较少,因此对稻田蟹的砷含量调查以及食品安全评价的要求十分迫切,具有重要的现实意义。

本研究以辽宁省盘锦市和鞍山市养殖的稻田蟹可食部分为研究对象,应用电感耦合等离子体质谱法(inductively coupled plasma-mass spectrometry, ICP-MS)和液相色谱-串联原子荧光法(liquid chromatography-atomic fluorescence spectroscopy, LC-AFS)分别测定了稻田蟹可食部分中的总砷和总无机砷含量,分析了总砷和总无机砷在

稻田蟹体内的分布规律,以无机砷含量作为评价依据,采用健康风险评价指数对稻田蟹可食部分中砷膳食暴露量及食用安全性进行分析评价,以期为消费者健康、理性消费提供依据。

1 材料与方法

1.1 样本采集

2021 年 9 月在辽宁省盘锦市和鞍山市主要养殖基地采集稻田蟹 28 份(见表 1)。随机选择规格一致的稻田蟹鲜活样品,每份样品包含产于同一田块内 10 只雄蟹和 10 只雌蟹[雄蟹体重为(75±5) g;雌蟹体重为(60±5) g],共计 560 只。将采集的稻田蟹通过冷链运输带回实验室。在解剖前,将稻田蟹表面水分擦干,用分析天平称重,去壳,分别取稻田蟹可食部分肌肉、蟹黄和蟹膏(肝胰腺及性腺混合物)等组织部位匀浆,样品-80℃贮存,待测。

1.2 仪器与试剂

7500cx 电感耦合等离子体-质谱仪[配置八极杆碰撞/反应池系统(ORS),美国 Agilent 公司];2695e-AFS9780 液相色谱-原子荧光光谱联用仪(美国 Waters 公司);MARS X 微波消解仪(美国 CEM 公司);Milli-Q 超纯水机(美国 Millipore 公司);BSA124S 分析天平(感量 0.01 mg,德国赛多利斯公司);Hamilton PRP-X100 阴离子交换色谱柱(250 mm×4.1 mm, 10 μm)、Hamilton PRP-X100 阴离子交换色谱保护柱(25 mm×

2.3 mm, 12~20 μm)(瑞士 Hamilton Bonaduz AG 公司)。
亚砷酸盐 [As(III)] 标准溶液 (GBW08666)、砷酸盐 [As(V)] 标准溶液(GBW08667) (100 mg/L, 国家标准物质研究中心);HNO₃、HCl、KBH₄、KOH、(NH₄)₂HPO₄(优级纯,国药集团化学试剂北京有限公司);Li、Sc、Ge、Rh、In、Tb、Lu、Bi 内标溶液(100 mg/L)、Li、Y、Ce、Tl、Co 调谐液(10 mg/L)(美国 Agilent 公司);超纯水(电阻率 ≥ 18.2 MΩ·cm),由 Milli-Q 超纯水机制备;氩气、氦气(纯度 ≥ 99.999%,中国新特气体有限公司)。

1.3 总砷含量的测定

总砷的测定方法参考文献[23],分析用的玻璃器皿在使用前用浓 HNO₃ 浸泡过夜,超纯水冲洗 3 遍,烘干备用。样品使用微波消解:用分析天平准确称取 0.5 g 样品,加入质量浓度为 65%的 HNO₃ 2.5 mL、37%的 HCl 0.5 mL、超纯水 7.0 mL;微波消解程序为:微波功率 1600 W (50%),爬升温度 185℃,升温时间 10.5 min,保持时间 14.5 min。消解完成后,将消解液移入 50 mL 容量瓶中,加入内标溶液(100 μg/L) 0.5 mL,定容至 50 mL。同时做样品空白溶液。消解后的样品和试剂空白均用 ICP-MS 检测。

1.4 无机砷含量的测定

采用 GB 5009.11—2014《食品安全国家标准 食品中总砷及无机砷的测定》中的方法对稻田蟹可食部分无机砷含量

表 1 样本信息

Table 1 Sample information

编号	采样点	编号	采样点	编号	采样点
AS-1	鞍山市海城市西四镇刘家村	DW-6	盘锦市大洼区三角洲	MJ-1	盘锦市盘山县胡家镇毛家村
AS-2	鞍山市海城市西四镇北海村	DW-7	盘锦市大洼区盘锦光合蟹业有限公司大水面	MJ-2	盘锦市盘山县胡家镇毛家村
AS-3	鞍山市海城市西四镇新后村	ZJ-1	盘锦市盘山县胡家镇张家村	MJ-3	盘锦市盘山县胡家镇毛家村
AS-4	鞍山市海城市西四镇南海村	ZJ-2	盘锦市盘山县胡家镇张家村	TZ-1	盘锦市盘山县胡家镇坨子村
AS-5	鞍山市海城市西四镇八家村	XH-1	盘锦市盘山县胡家镇西胡村	TZ-2	盘锦市盘山县胡家镇坨子村
DW-1	盘锦市大洼区三角洲	XH-2	盘锦市盘山县胡家镇西胡村	YJ-1	盘锦市盘山县胡家镇姚家村
DW-2	盘锦市大洼区三角洲	XH-3	盘锦市盘山县胡家镇西胡村	LJ-1	盘锦市盘山县胡家镇梁家村
DW-3	盘锦市大洼区三角洲	TJ-1	盘锦市盘山县胡家镇田家村	DH-1	盘锦市盘山县胡家镇东胡村
DW-4	盘锦市大洼区三角洲	TJ-2	盘锦市盘山县胡家镇田家村	-	-
DW-5	盘锦市大洼区三角洲	TJ-3	盘锦市盘山县胡家镇田家村	-	-

注:-表示无。

进行测定,其中总无机砷含量等于 As(III)和 As(V)含量的加和。仪器分析条件参照文献[24]。LC 条件:阴离子交换色谱柱 Hamilton PRP-X100 (250 mm×4.1 mm, 10 μm), 阴离子交换色谱保护柱 Hamilton PRP-X100 (25 mm×2.3 mm, 12~20 μm); 流动相为 15 mmol/L (NH₄)₂HPO₄ 缓冲液(pH 6.00±0.02); 流速为 1.0 mL/min; 进样体积 100 μL。AFS 条件: 负高压 320 V; 灯电流/辅阴极电流 100/45 mA; 载气流速 400 mL/min; 屏蔽气流速 600 mL/min。还原剂采用 1.5% KBH₄ 水溶液(内含 0.5% 的 KOH), 随配随用; 载流剂采用 7% HCl。

1.5 单因子污染指数法

采用单因子污染指数法评价稻田蟹可食部分中总无机砷的污染状况^[25], 其计算公式如式(1):

$$P_i = \frac{C_i}{S_i} \quad (1)$$

式中, P_i 为稻田蟹可食部分总无机砷污染指数; C_i 为稻田蟹可食部分总无机砷质量浓度, mg/kg; S_i 为虾蟹中无机砷的限量值, mg/kg。

本研究通过单因子污染指数 P_i 对 28 组稻田蟹样品的无机砷污染情况进行评价, 根据 P_i 值大小可以将污染风险分为 4 个等级: 无污染($P_i < 0.2$)、轻度污染($0.2 \leq P_i < 0.6$)、中度污染($0.6 \leq P_i < 1.0$)和严重污染($P_i \geq 1.0$)。

1.6 膳食暴露评估

日膳食暴露量(estimated daily ingestion, EDI)可以用来估算每人每天通过食用水产品的途径摄入的重金属的含量^[26-27], 其计算公式如式(2):

$$EDI = \frac{IR \times C}{BW_a} \times 10^{-3} \quad (2)$$

式中, EDI 为人体砷的每日摄入量, μg/(kg·d); IR 为鱼虾类的人均日摄入量(ingestion rate, 29.6 g/d, 湿重); C 为河蟹中总砷或无机砷含量(μg/kg), 本研究取平均值和最大值分别计算; BW_a 为成年人平均体重(body weight adult, kg), 按照我国成年男性和女性的平均体质量(分别为 66.2 kg 和 57.3 kg)计算^[28]。

采用危害商数(target hazard quotient, THQ)来评价砷暴露对人体健康造成的潜在风险, 其计算公式如式(3):

$$THQ = \frac{EDI \times EF \times ED}{RfD \times AT} \quad (3)$$

式中, THQ 为稻田蟹可食部分无机砷的危害商数; RfD 为稻田蟹可食部分无机砷的口服参考剂量[oral reference dose, 3.0×10⁻⁴ mg/(kg·d)]; EF 为暴露频率(ingestion exposure frequency, 365 d/year); ED 为暴露年限(ingestion exposure duration, 70 years); AT 为暴露平均时间(average lifespan, 25550 d)^[29]。

采用致癌风险(cancer risk, CR)来评估摄入稻田蟹可食部分中的无机砷对人体产生的健康风险。计算公式如式(4):

$$CR = \frac{EDI \times SF \times EF \times ED}{AT} \quad (4)$$

式中: CR 为稻田蟹可食部分的致癌风险概率; SF 为无机砷的致癌因子[cancer slope factor, (1.5 kg·d)/mg]^[23]。

根据 CR 值可以将致癌风险分为 5 个等级: 极低风险(level I, CR ≤ 1×10⁻⁶)、低风险(level II, 1×10⁻⁶ < CR ≤ 1×10⁻⁴)、中等风险(level III, 1×10⁻⁴ < CR ≤ 1×10⁻³)、高风险(level IV, 1×10⁻³ < CR ≤ 0.1)、极高风险(level V, CR > 0.1)^[30]。

1.7 数据处理

采用 SPSS Statistics 25.0 和 WPS 11.1.0.11744 对实验数据进行汇总和分析, 组间分析采用单因素方差分析(one-way analysis of variance, ANOVA); 使用 GraphPad Prism 8 软件和生科云平台绘图。

2 结果与分析

2.1 稻田养殖中华绒螯蟹的可食部分中总砷和总无机砷含量的测定

稻田蟹的总砷均值呈现雌蟹肝胰腺与性腺>雄蟹肝胰腺与性腺>雄蟹肌肉>雌蟹肌肉的趋势(表 2)。其中雌蟹肝胰腺及性腺中总砷均值显著高于其肌肉总砷均值($P < 0.05$), 而雄蟹肝胰腺及性腺中总砷均值与其肌肉中总砷均值无显著差异($P > 0.05$); 雌蟹与雄蟹的肝胰腺及性腺中总砷均值之间无显著差异, 二者肌肉中总砷均值亦无显著差异; 雌蟹肝胰腺及性腺中总砷均值与雄蟹肌肉中总砷均值有显著差异($P < 0.05$)。由此可见, 稻田蟹可食部分中总砷的含量分布不同且与性别有较大关系, 在肝胰腺与性腺组织中具有较高的总砷含量, 且雌蟹高于雄蟹; 肌肉中总砷含量低于肝胰腺及性腺, 且雄蟹高于雌蟹。雄蟹肝胰腺及性腺和雄蟹肌肉中总砷含量高于甲壳类动物中总砷含量的 GB 5009.11—2014 (0.5 mg/kg), 因而有必要对稻田蟹的总无机砷含量进行检测。稻田蟹的总无机砷含量在肝胰腺与性腺中高于肌肉中的含量, 呈现雌蟹肝胰腺与性腺>雄蟹肝胰腺与性腺>雌蟹肌肉>雄蟹肌肉的趋势(表 2)。除雄蟹肌肉总无机砷均值显著低于其他各组($P < 0.05$)外, 其余各组间无显著差异($P > 0.05$)。稻田蟹各组总无机砷均值仅为总砷均值的 5.014%~6.250%, 低于甲壳类动物中总无机砷含量的国家标准(0.5 mg/kg)。由此可见, 稻田蟹的可食部分总无机砷的含量分布不同且远低于总砷含量。

2.2 稻田养殖中华绒螯蟹的可食部分无机砷污染评价

图 1 为稻田蟹可食部分中无机砷污染情况, 从图 1 中可知有 3 组样品的 P_i 值超过 0.2, 属于轻度污染, 其中 LJ-1 地区的雄蟹肝胰腺及性腺的 P_i 值最高, 达到 0.236, 其次是 DW-4 地区的雌蟹肝胰腺及性腺样品和雌蟹肌肉样品, 分别为 0.230 和 0.224; 剩余 25 组样品的 P_i 值均小于 0.2, 属于无污染的范畴。

表 2 稻田养殖中华绒螯蟹不同组织中总砷和总无机砷的含量水平(mg/kg 湿重, n=3)
Table 2 Content levels of total arsenic and total inorganic arsenic in different tissues of rice-farmed *Eriocheir sinensis* (mg/kg wet weight, n=3)

性别	组织部位	样品数量	总砷		总无机砷		与总砷的质量分数比/%
			范围	均值	范围	均值	
雄性	肝胰腺及性腺	280	0.243~1.779	0.619±0.331 ^{AB}	ND~0.118	0.034±0.022 ^C	5.493
	肌肉	280	0.152~0.966	0.503±0.255 ^A	ND~0.054	0.028±0.009 ^D	5.567
雌性	肝胰腺及性腺	280	0.300~1.733	0.718±0.353 ^B	ND~0.115	0.036±0.024 ^C	5.014
	肌肉	280	0.181~0.969	0.480±0.201 ^A	ND~0.112	0.030±0.018 ^C	6.250

注: ND 表示无; 同一列不同大写字母表示具有显著性差异(P<0.05), 同一列相同大写字母表示无显著差异(P>0.05)。

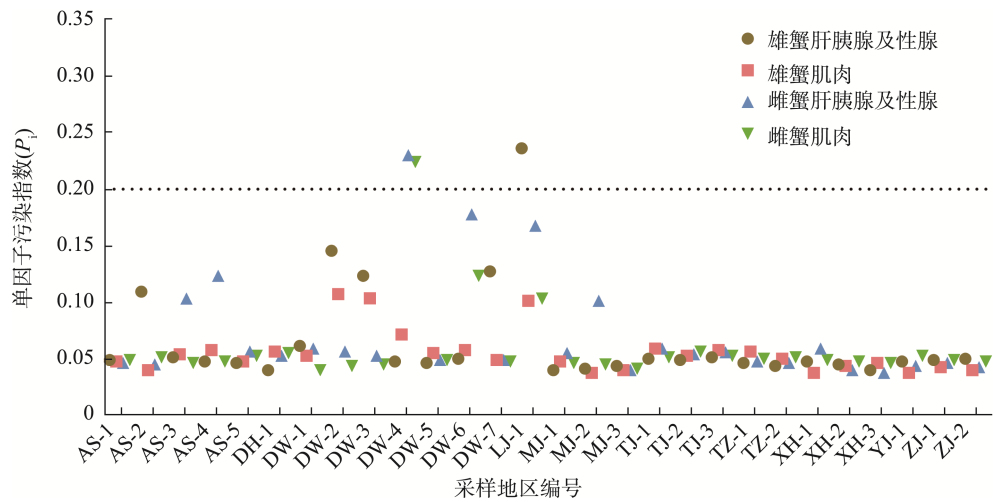
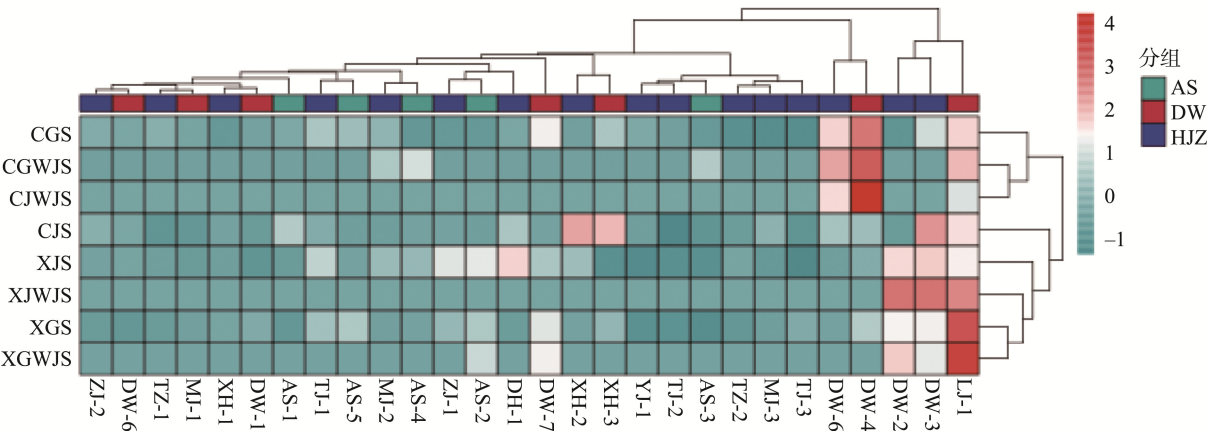


图 1 稻田养殖中华绒螯蟹可食部位单因子污染指数
Fig.1 P_i of edible parts of rice-farmed *Eriocheir sinensis*

2.3 产地因素对稻田养殖中华绒螯蟹可食部分总砷和总无机砷含量的影响

为了更加直观地分析 28 组稻田蟹样品因产地因素导致的总砷和总无机砷含量的变化情况,利用分组聚类热图对数据进行了可视化处理。通过横向聚类反映出不同产地的稻田蟹在某一可食部分的总砷或总无机砷变化情况,利用纵向聚类反映出稻田蟹可食部分总砷和总无机砷与某一地区的相互关系。分组聚类热图中相对值越高则红色越深,反之则青色越深。28 组不同产地稻田蟹可食部分总砷和总无机砷含量相对值的变化热图及聚类分析结果如图 2 所示: LJ-1 地区的总砷和总无机砷含量呈现极端红色,表明 LJ-1 地区显著影响了稻田蟹可食部分总砷和总无机砷的含量; DW-3 和 DW-2 地区则是显著影响了稻田蟹雄蟹可食部分的总砷和总无机砷含量; DW-4 和 DW-6 地区显著影响了稻田蟹雌蟹肝胰腺及性腺的总砷和总无机砷含量,同时也显著影响了雌蟹肌肉中总砷和总无机砷的含量。根据中华绒螯蟹可食部分总砷和总无机砷相对值的变化情况,可将 28 组样品分为 8 大类,其中 LJ-1 单独聚类,该地区稻田蟹可食部分总砷和总无机砷相对值较高; DW-2 和 DW-3 聚为一类,这些地区雄蟹可食部分总砷和总无机砷相对值较高; DW-4 和 DW-6 聚为一类,这些地区雌蟹

肝胰腺及性腺总砷和总无机砷相对值较高; TJ-3、MJ-3、TZ-2、AS-3、TJ-2 和 YJ-1 聚为一类,这些地区肌肉中总砷含量较低; XH-2 和 XH-3 聚为一类,这些地区雌蟹肌肉中总砷含量较高; DW-7 单独聚类,该地区稻田蟹肝胰腺与性腺的总砷含量较高; DH-1、AS-2 和 ZJ-1 聚为一类,这些地区雄蟹肌肉中总砷含量较高; 剩余的 AS-4、MJ-2、AS-5、TJ-1、AS-1、DW-1、XH-1、MJ-1、TZ-1、DW-5、ZJ-2 聚为一类,剩余地区的总砷和总无机砷含量相对较低。造成稻田蟹体内总砷和总无机砷含量具有地区性差异的原因,可能是因为随着近年来经济建设的飞速发展,城镇化进程加快,城市面积逐步扩大,而盘锦市盘山县大洼区和胡家镇梁家村的几个采样点离市区较近,一些工业及生活废水可能会间接地影响该地的水质,从而影响了中华绒螯蟹样品中砷的含量。刘香丽等^[24]的研究指出,安徽地区中华绒螯蟹的砷含量变化情况与本地铜矿、冶炼厂等工业废水的污染有直接关系; 邓爱萍等^[31]在江苏省重金属防控区河流底泥中重金属污染及潜在生态风险评价研究中也发现,即使处理后的工业废水达到排放标准,但是长期的排放也会在水中蓄积大量的重金属。当然稻田蟹砷的含量也与池塘大小、饲料是否受到污染以及蟹农的管理水平等因素有关。



注: XGWJS 为雄蟹肝胰腺与性腺组织的总无机砷含量; XGS 为雄蟹肝胰腺与性腺的总砷含量; XJWJS 为雄蟹肌肉组织的总无机砷含量; XJS 为雄蟹肌肉组织总砷含量; CJWJS 为雌蟹肌肉组织总无机砷含量; CJS 为雌蟹肌肉组织总砷含量; CGWJS 为雌蟹肝胰腺与性腺的总无机砷含量; CGS 为雌蟹肝胰腺与性腺的总砷含量。

图 2 不同地区稻田养殖中华绒螯蟹可食部位总砷和总无机砷含量的分组聚类热图

Fig.2 Cluster heat map of total arsenic and total inorganic arsenic content in edible parts of rice-farmed *Eriocheir sinensis* in different regions

2.4 膳食风险评估

本研究利用总无机砷含量评估对人类潜在的健康风险,通过测定 560 份中华绒螯蟹样品中可食部位的总无机砷含量,发现个体总无机砷的最高含量为 0.118 mg/kg,仅为国家标准中对蟹类无机砷限值的 23.6%。通过 EDI、THQ、CR 来进一步评估人类摄入稻田蟹可食部分后可能造成的健康影响。THQ 法可以评价单一重金属暴露以及多种重金属复合暴露的健康风险,图 3A 为 28 个采样地区稻田蟹可食部位总无机砷的 THQ,从图 3A 中可以很明显看出样品 THQ 值远小于 1,表明辽宁地区稻田养殖的中华绒螯蟹不会对人类带来潜在的健康风险。有学者指出,THQ 值是一个高度保守的相对型指数,可能忽略了某些现有的健康风险^[32],因此,增加 CR 指标表征由于污染物暴露导致的人类一生增加的患癌症可能性。通常认为 level I & II

的致癌风险水平是可接受的,图 3B 为 28 个采样地区稻田蟹可食部位总无机砷的 CR 指数,从图 3B 中可以很明显地看出样品 CR 值在 10^{-6} 和 10^{-4} 之间,说明稻田蟹可食部分仅具有低致癌风险(level II),说明正常食用本地区稻田蟹不会对消费者带来潜在的健康风险。为了更加直观地引导消费者的合理膳食,以 70 kg 重的成年男子为例,按照每 30 只 150 g 稻田蟹能产出 500 g 可食用肉来计算,得出 70 kg 重的成年男性每天稻田蟹食用量应控制在 39 只以下。

3 结 论

本研究将中华绒螯蟹的可食部分分为肌肉和肝胰腺及性腺混合物两个部分,并按照 GB 5009.11—2014 的检测方法,对其总砷和总无机砷含量进行了检测。结果表明,辽宁省稻田蟹肝胰腺与性腺组织混合物中砷的含量要高于肌肉

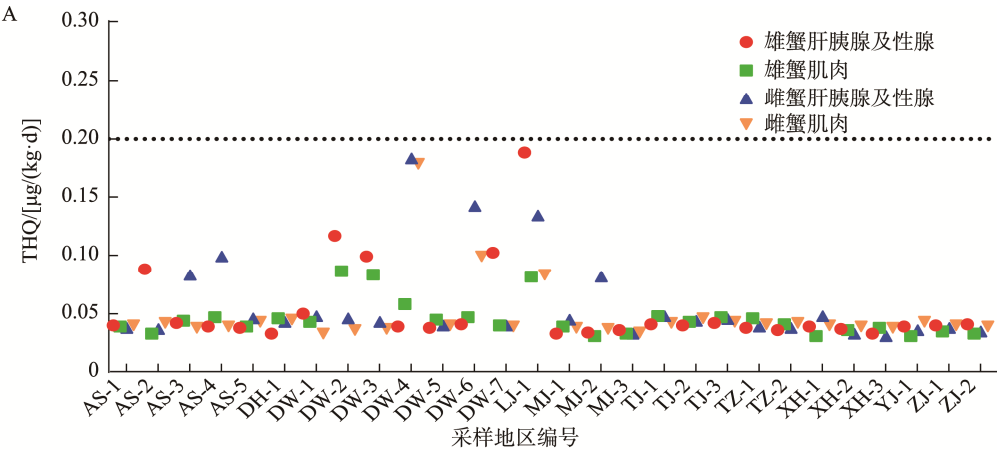


图 3 稻田养殖中华绒螯蟹可食部位危害商数(THQ)及致癌风险(CR)

Fig.3 THQ and CR of edible parts of rice-farmed *Eriocheir sinensis*

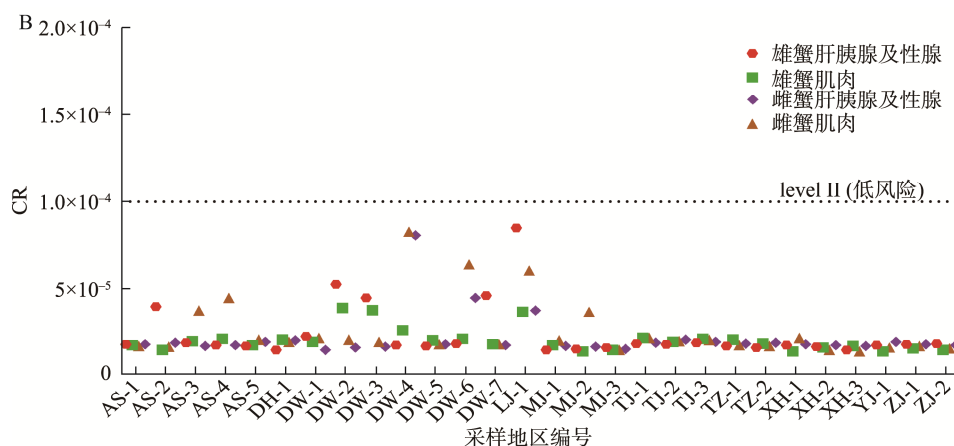


图 3(续) 稻田养殖中华绒螯蟹可食部位危害商数(THQ)及致癌风险(CR)

Fig.3 THQ and CR of edible parts of rice-farmed *Eriocheir sinensis*

组织,且雌性高于雄性,总无机砷含量仅占总砷含量的5.014%~6.250%;盘锦市盘山县大洼区和胡家镇梁家村稻田蟹的砷含量相较于其他地区要偏高,而其余的采样点总砷和总无机砷含量处在一个较低的水平;辽宁省稻田蟹所有样品的THQ值远低于1,CR值在 10^{-6} 和 10^{-4} 之间,经判别仅具有低致癌风险(level II)。综上所述,表明辽宁省稻田养殖中华绒螯蟹不会对消费者带来潜在的健康风险。

参考文献

- [1] 堵南山. 中华绒螯蟹的同属种类及其英文名称[J]. 水产科技情报, 1998, (3): 12–13, 17.
DU NS. Species of *Eriocheir sinensis* of the same genus and their English names [J]. Fish Sci Technol Inform, 1998, (3): 12–13, 17.
- [2] 王潇, 韩刚, 张小军, 等. 不同水域中华绒螯蟹雄性营养成分及风味成分差异性研究[J]. 大连海洋大学学报, 2019, 34(5): 688–696.
WANG X, HAN G, ZHANG XJ, et al. Differences nutrient composition and flavor components of *Eriocheir sinensis* males from different waters [J]. J Dalian Ocean Univ, 2019, 34(5): 688–696.
- [3] 农业农村部渔业渔政管理局, 全国水产技术推广总站, 中国水产学会. 2021 中国渔业统计年鉴[M]. 北京: 中国农业出版社, 2021.
Fisheries and Fishery Administration of the Ministry of Agriculture and Rural Affairs, National Fisheries Technology Promotion Station, and Chinese Fisheries Society. 2021 China fisheries statistical year book [M]. Beijing: China Agricultural Press, 2021.
- [4] 农业农村部渔业渔政管理局, 全国水产技术推广总站, 中国水产学会. 中国稻渔综合种养产业发展报告(2020)[J]. 中国水产, 2020, (10): 12–19.
Fisheries and Fishery Administration of the Ministry of Agriculture and Rural Affairs, National Fisheries Technology Promotion Station, and Chinese Fisheries Society. Report on the development of China's integrated rice and fishery farming industry (2020) [J]. China Fish, 2020, (10): 12–19.
- [5] 王成辉, 李思发. 中华绒螯蟹种质研究进展[J]. 中国水产科学, 2002, 10(1): 82–86.
WANG CH, LI SF. Research progress of *Eriocheir sinensis* germplasm [J]. J Fish Sci China, 2002, 10(1): 82–86.
- [6] 张夫道. 肥料中的有害成分[J]. 农业环境科学学报, 1985, (3): 17–19.
ZHANG FD. Harmful components in fertilizers [J]. J Agro-Environ Sci, 1985, (3): 17–19.
- [7] 刘攀攀. 水稻田中砷污染的生态效应及其控制的初步研究[D]. 重庆: 重庆大学, 2015.
LIU PP. Preliminary study on the ecological effects of arsenic pollution in rice fields and its control [D]. Chongqing: Chongqing University, 2015.
- [8] KUO CC, MOON KA, WANG SL, et al. The association of arsenic metabolism with cancer, cardiovascular disease, and diabetes: A systematic review of the epidemiological evidence [J]. Environ Health Persp, 2017, 125(8): 087001.
- [9] 王悦, 周孜迈, 邓文娜, 等. 两种体系去除水体中砷的研究[J]. 环境化学, 2018, 37(12): 2613–2620.
WANG Y, ZHOU ZM, DENG WN, et al. Study on the removal of arsenic from water by two systems [J]. Environ Chem, 2018, 37(12): 2613–2620.
- [10] 国家药品监督管理局. 世界卫生组织国际癌症研究机构致癌物清单 [EB/OL]. [2017-10-30]. <http://www.nmpa.gov.cn/WS04/CL2068/329742.html> [2021-12-06].
State Drug Administration. World Health Organization International Agency for Research on Cancer list of carcinogens [EB/OL]. [2017-10-30]. <http://www.nmpa.gov.cn/WS04/CL2068/329742.html> [2021-12-06].
- [11] 陈保卫, LE X CHRIS. 中国关于砷的研究进展[J]. 环境化学, 2011, 30(11): 1936–1943.
CHEN BW, LE XC. Progress of arsenic research in China [J]. Environ Chem, 2011, 30(11): 1936–1943.
- [12] 王松, 崔鹤, 王境堂, 等. 南极磷虾油中总砷含量及砷形态分析[J]. 分析化学, 2016, 44(12): 767–772.
WANG S, CUI H, WANG JT, et al. Analysis of total arsenic content and arsenic morphology in Antarctic krill oil [J]. Chin J Anal Chem, 2016, 44(5): 767–772.
- [13] TAYLOR V, GOODALE B, RAAB A, et al. Human exposure to organic arsenic species from seafood [J]. Sci Total Environ, 2017, 580: 266–282.
- [14] VASKEN AH, ZAKHARYAN RA, AVRAM MD, et al. A review of the enzymology of arsenic metabolism and a new potential role of hydrogen peroxide in the detoxication of the trivalent arsenic species [J]. Toxicol Appl Pharm, 2004, 198(3): 327–335.

- [15] 李友. 砷中毒机制研究进展[J]. 环境卫生学杂志, 2001, 28(5): 261–262.
LI Y. Progress in the study of the mechanism of arsenic poisoning [J]. J Environ Hyg, 2001, 28(5): 261–262.
- [16] BORCH T, KRETZSCHMAR R, KAPPLER A, *et al.* Biogeochemical redox processes and their impact on contaminant dynamics [J]. Environ Sci Technol, 2010, 44: 15–23.
- [17] TAKAHASHI Y, MINAMIKAWA R, HATTORI KH, *et al.* Arsenic behavior in paddy fields during the cycle of flooded and non-flooded periods [J]. Environ Sci Technol, 2004, 38: 1038–1044.
- [18] YAMAGUCHI N, NAKAMURA T, DONG D, *et al.* Arsenic release from flooded paddy soils is influenced by speciation, Eh, pH, and iron dissolution [J]. Chemosphere, 2011, 83: 925–932.
- [19] 齐自元, 胡钰梅, 曹欢, 等. 中华绒螯蟹不同可食组织砷元素分布特征分析[J]. 上海海洋大学学报, 2022, 31(4): 1005–1015.
QI ZY, HU YM, CAO H, *et al.* Characterization of the distribution of arsenic elements in different edible tissues of the *Eriocheir sinensis* (*Oncorhynchus mykiss*) [J]. J Shanghai Ocean Univ, 2022, 31(4): 1005–1015.
- [20] 叶洪, 朱品玲, 钟茂生, 等. 福建海域养殖海重金属含量分析及评价[J]. 渔业研究, 2019, 41(03): 234–240.
YE H, ZHU PL, ZHONG MS, *et al.* Analysis and evaluation of heavy metal content of cultured sea cucumbers in Fujian waters [J]. J Fish Res, 2019, 41(3): 234–240.
- [21] SUN M, LIU G, WU Q, *et al.* Speciation analysis of inorganic arsenic in coal samples by microwave-assisted extraction and high performance liquid chromatography coupled to hydride generation atomic fluorescence spectrometry [J]. Talanta, 2013, 106: 8–13.
- [22] 罗靳, 郑怀东, 刘学光, 等. 辽宁海域捕捞水产品中无机砷的生物富集现象[J]. 农业技术与装备, 2016, (5): 12–14.
LUO J, ZHENG HD, LIU XG, *et al.* Bioconcentration of inorganic arsenic in marine products caught in Liaoning waters [J]. Agric Technol Equip, 2016, (5): 12–14.
- [23] 严国, 梅光明, 常家琪, 等. 电感耦合等离子体质谱法分析海蟹中的砷元素分布特征[J]. 食品科学, 2019, 40(12): 332–339.
YAN G, MEI GM, CHANG JQ, *et al.* Characterization of arsenic distribution in sea crabs by inductively coupled plasma mass spectrometry [J]. Food Sci, 2019, 40(12): 332–339.
- [24] 刘香丽, 汪倩, 宋超, 等. 安徽养殖中华绒螯蟹体内砷形态的分布特征及膳食风险评估[J]. 南方水产科学, 2020, 16(6): 105–113.
LIU XL, WANG Q, SONG C, *et al.* Distribution characteristics and dietary risk assessment of arsenic forms in farmed *Eriocheir sinensis* in Anhui Province [J]. South China Fish Sci, 2020, 16(6): 105–113.
- [25] 王政, 王扬, 何辉, 等. 浙江省海水贝类中无机砷测定和安全性分析[J]. 食品安全质量检测学报, 2021, 12(1): 389–393.
WANG Z, WANG Y, HE H, *et al.* Determination and safety analysis of inorganic arsenic in marine shellfish in Zhejiang Province [J]. J Food Saf Qual, 2021, 12(1): 389–393.
- [26] U.S. Environmental Protection Agency, 2004. Risk assessment guidance for superfund volume I: Human health evaluation manual (part E, Supplemental guidance for dermal risk assessment) [Z].
- [27] QIN D, JIANG H, BAI S, *et al.* Determination of 28 trace elements in three farmed cyprinid fish species from northeast China [J]. Food Control, 2015, 50: 1–8.
- [28] 覃东立, 姜海峰, 黄晓丽, 等. 东北稻蟹中 18 种微量元素含量及健康风险评估[J]. 农业资源与环境学报, 2019, 36(2): 245–252.
QIN DL, JIANG HF, HUANG XL, *et al.* Content and health risk evaluation of 18 trace elements in rice crabs in Northeast China [J]. J Agric Res Environ, 2019, 36(2): 245–252.
- [29] 马莉, 陆春胜, 王思佳, 等. 崇明区食用农产品重金属污染状况及健康风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2020, 11(13): 4226–4230.
MA L, LU CS, WANG SJ, *et al.* Heavy metal pollutions and health risk assessment of edible agricultural products in Chongming district [J]. J Food Saf Qual, 2020, 11(13): 4226–4230.
- [30] 姚奋增, 高海荣, 刘晨, 等. 茶叶中铝、铅、砷、汞、铬、镉含量的分析及危害评价[J]. 食品安全质量检测学报, 2021, 12(1): 291–297.
YAO FZ, GAO HR, LIU C, *et al.* Analysis and hazard evaluation of aluminium, lead, arsenic, mercury, chromium and cadmium content in tea [J]. J Food Saf Qual, 2021, 12(1): 291–297.
- [31] 邓爱萍, 董圆媛, 沈红军, 等. 江苏省重金属防控区河流底泥中重金属污染及潜在生态风险评估研究[J]. 环境科学与管理, 2016, 41(4): 167–170, 175.
DENG AIP, DONG YY, SHEN HJ, *et al.* Study on the evaluation of heavy metal pollution and potential ecological risk in river sediment of heavy metal prevention and control area in Jiangsu Province [J]. Environ Sci Manag, 2016, 41(4): 167–170, 175.
- [32] WANG X, SATO T, XING B, *et al.* Health risks of heavy metals to the general public in Tianjin, China via consumption of vegetables and fish [J]. Sci Total Environ, 2005, 350(1–3): 28–37.

(责任编辑: 于梦娇 郑 丽)

作者简介



夏邦华, 博士研究生, 主要研究方向为水产动物遗传育种及水产质量安全。
E-mail: 1037352095@qq.com



韩 英, 教授, 主要研究方向为水产动物遗传育种。
E-mail: hanyingzou@neau.edu.cn



覃东立, 研究员, 主要研究方向为渔业环境及水产品质量安全。
E-mail: qdl978@163.com