

• 研究论文 •

浙江居民毒死蜱和氯氰菊酯的 长期膳食暴露与风险评估

张志恒*, 袁玉伟, 王强, 王小骊, 叶雪珠, 杨桂玲

(浙江省农业科学院 农产品质量标准研究所 农业部农产品质量监督检验测试中心(杭州), 杭州 310021)

摘 要: 基于 2007–2008 年浙江省市场销售农产品中毒死蜱和氯氰菊酯残留的监测数据及浙江不同人群的各类食物摄入量和体重数据, 采用分布点评估的方法, 评估了浙江省 20 个不同年龄、性别组人群毒死蜱和氯氰菊酯的长期膳食暴露风险水平。结果表明, 浙江省不同年龄、性别组人群毒死蜱长期膳食暴露带来的慢性风险仍控制在较低水平范围内, 只有当长期食用毒死蜱残留超过监测资料中的 99th百分位点值(蔬菜、水果和大米分别为 0.395、0.165 和 0.011 mg/kg)的食物时, 才可能产生不可接受的较大风险。而氯氰菊酯的膳食暴露风险更低, 即使长期持续食用的果蔬产品中氯氰菊酯残留都达到监测资料中的最大残留值(蔬菜和水果分别为 1.830 和 0.519 mg/kg), 其膳食暴露风险仍属于可接受水平。对膳食暴露的贡献率分析结果显示, 蔬菜类食品仍是浙江居民毒死蜱和氯氰菊酯膳食暴露的主要来源, 控制蔬菜[特别是青菜(greengrocery)、芹菜(celery)和白菜(Chinese cabbage)]中毒死蜱和氯氰菊酯残留是降低这 2 种农药膳食暴露风险的关键。

关键词: 膳食暴露; 风险评估; 毒死蜱; 氯氰菊酯; 残留

DOI 10.3969/j.issn.1008-7303.2010.03.18

中图分类号: S481.8 & TS201.6

文献标志码: A

文章编号: 1008-7303(2010)03-0335-09

On the long-term dietary exposure and its risk assessment of chlorpyrifos and cypemethrin for the residents in Zhejiang Province

ZHANG Zhiheng*, YUAN Yuwei, WANG Qiang, WANG Xiao-li
YE Xue-zhu, YANG Gui-ling(Institute of Quality and Standards for Agricultural Products, Zhejiang Academy of Agricultural Sciences,
Hangzhou Centre of Inspection and Testing for Agricultural Products,
Ministry of Agriculture of China, Hangzhou 310021, China)

Abstract Based on the monitoring data of chlorpyrifos and cypemethrin residue in agricultural products in 2007–2008, the intake of varieties of foods and body weight of different population in Zhejiang Province, the long-term dietary exposure risk levels of chlorpyrifos and cypemethrin in 20 different age and sex groups are estimated with the distribution point estimation method. The result showed that the chronic risk level of chlorpyrifos is much low for different age and sex groups in

收稿日期: 2010-02-23 修回日期: 2010-04-29

作者简介: * 张志恒(1962–), 男, 浙江仙居人, 通讯作者(Author for correspondence), 硕士, 研究员, 主要研究方向为风险评估与农产品质量标准, 电话: 0571-86419053, E-mail: zhenges@126.com

基金项目: “十一五”国家科技支撑计划课题(2009BADB7B03); 浙江省科技厅面上科研农业项目(2008C22085); 浙江省农业科学院重点实验室前瞻性项目(YS2009QZ10); 浙江省农业科学院创新提升工程项目(2009R19Y01D02)。

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

Zhejiang, and the unacceptable risk would be resulted only when the residue exceeding 99th percentile of the monitoring data (vegetable, fruit and rice is 0.395, 0.165 and 0.011 mg/kg respectively) in long time. The risk level of cypermethrin is lower than chlorpyrifos and acceptable even the residue of the great mass of his food arrived at maximum of the monitoring data (vegetable and fruit is 1.830 and 0.519 mg/kg respectively). Vegetable is shown to be main source of dietary exposure of chlorpyrifos and cypermethrin for the residents in Zhejiang Province, and the key point to decrease the exposure is to control the residue of chlorpyrifos and cypermethrin in vegetables (especially in greengrocery, celery and Chinese cabbage).

Key words dietary exposure; risk assessment; chlorpyrifos; cypermethrin; residue

农产品中的农药残留是近年国内外重点关注的食品安全问题之一。现代的毒理学研究证明,目前国内外允许使用的农药中,只有在人体摄入达到一定量时才可能产生急性或慢性危害。各国和相关国际组织基于各种农药的毒理学指标、良好农业规范(GAP)条件下的残留数据、各国居民的食物消费量数据和农产品及其加工产品的贸易考虑,制定了各种农产品及其加工产品的农药残留限量标准(MRLs),并对各个不同环节进行了残留监测^[1-2]。近年来,我国各级食品安全监管部门也组织实施了很多农药残留监测工作,获得了大量的监测数据,并直接与相关的残留限量标准进行比较,以残留量是否超标来判定产品的安全性。然而,农药残留是否超标只是判定该产品能否合法上市的依据,而不能直接得出膳食是否安全的结论。为了科学地掌握特定对象的膳食风险水平,国际上已经形成了比较完整的风险评估技术体系^[3-4]。欧、美、日、澳等主要发达国家以及韩国、巴西等都从不同角度进行了比较系统的农药膳食风险评估,为其风险管理提供了科学依据^[5-7]。近年来,我国也引进了一些风险评估的技术方法,开始对乙酰甲胺磷等农药进行了初步的膳食风险评估^[8]。笔者选择目前我国农产品中检出率较高的2种农药——毒死蜱(chlorpyrifos)和氯氰菊酯(cypermethrin),以2007-2008年农业部农产品质量监督检验测试中心(杭州)对浙江省农产品中农药残留情况的监测结果和卫生部的“中国居民营养与健康状况调查”的膳食数据为基础,采用分布点评估的方法,评估了浙江省20个不同年龄、性别组人群的膳食安全风险水平,以期能为农药膳食安全风险管理提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 食物消费量和体重数据

浙江省不同人群的各类食物消费量和体重数据

采用2002年“中国居民营养与健康状况调查”的资料^[9],浙江省的代表采样点为宁波市江北区、宁海县、海宁市、兰溪市。20类不同年龄、性别组人群蔬菜、水果、大米及其制品类食物的摄入量及体重数据见表1。

1.2 食物中农药残留数据

农药残留资料来自2007-2008年农业部农产品质量监督检验测试中心(杭州)对浙江省主要农产品的农药残留监测数据。样品来源涵盖浙江省全部11个地市的主要农产品批发市场以及代表性超市、农贸市场和农产品生产基地,样品种类涵盖青菜、白菜、甘蓝、芹菜、黄瓜、番茄、茄子、豇豆、四季豆9种主要蔬菜,柑橘、苹果、梨、葡萄、桃5种主要水果以及大米等农产品。蔬菜和水果样品的检测采用“NY/T 761-2008蔬菜和水果中有机磷、有机氯、拟除虫菊酯和氨基甲酸酯类农药多残留的测定”方法^[10],大米样品采用“GB/T 5009.145-2003植物性食品中有机磷和氨基甲酸酯类农药多种残留的测定”^[11]方法。

1.3 评估方法

利用Excel中的Percentile统计函数统计各种(类)食品的残留量分布,并计算不同百分位点的残留值,其中未检出的样品按检出限的1/2计算。分别用下列公式计算长期膳食暴露量(1)、慢性风险商(2)和各类食物对长期膳食暴露量的贡献率(3)^[8]:

$$EED_1 = \frac{\sum_{i=1}^n (F_i \times C_i)}{bw} \quad (1)$$

$$RQ_c = \frac{EED_1}{ADI \times 1\,000} \quad (2)$$

$$R_i = \frac{F_i \times C_i}{bw \times EED_1} \times 100\% \quad (3)$$

式中:

EED_i ——估计长期暴露量 (estimated long-term exposure dose), 单位为 $\mu\text{g}/(\text{kg bw} \cdot \text{d})$; F_i ——第 i 类食品摄入量, g/d ; C_i ——第 i 类食品中拟评估农药的残留量 (residue concentration), mg/kg 根据各类食品的残留分布, 分别采用不同百分位点的残留值, 计算得到的 EED_i 也分别是相应百分位点残留水平下的估计暴露量; bw ——某类人群的平均体重 (body weight), kg RQ_c ——慢性风险商 (chronic risk quotient); ADI ——每日允许摄入量 (acceptable daily intake), $\text{mg}/(\text{kg bw} \cdot \text{d})$; R_i ——第 i 类食物对评估农药长期膳食暴露量的贡献率 (contribution rate), 单位为 %。

当 $RQ > 1$ 时, 表示存在不可接受的较大风险, 数值越大, 风险越大; 而 $RQ < 1$ 时, 表示风险是可以接受的, 数值越小, 风险越小^[8]。

表 1 2002年浙江省不同年龄、性别组人群的体重及蔬菜、水果和大米摄入量

Table 1 Body weight and intake of vegetable, fruit, rice for different groups in Zhejiang Province in 2002

人群 Group	体重 Body weight/kg	平均摄入量 Average intake/(g/d)		
		蔬菜 Vegetable	水果 Fruit	大米 Rice
2~ 3岁 Age 2~ 3	男性 Boy	127. 4	112. 3	148. 3
	女性 Girl	122. 9	114. 1	146. 4
4~ 6岁 Age 4~ 6	男性 Boy	164. 8	121. 3	196. 7
	女性 Girl	160. 8	132. 1	174. 6
7~ 10岁 Age 7~ 10	男性 Boy	210. 3	121. 0	252. 7
	女性 Girl	202. 7	120. 5	232. 2
11~ 13岁 Age 11~ 13	男性 Boy	238. 1	120. 8	291. 5
	女性 Girl	233. 6	117. 2	261. 0
14~ 17岁 Age 14~ 17	男性 Boy	269. 4	124. 6	337. 9
	女性 Girl	241. 3	149. 3	263. 5
18~ 29岁 Age 18~ 29	男性 Male	297. 7	107. 4	339. 0
	女性 Female	274. 4	136. 0	285. 6
30~ 44岁 Age 30~ 44	男性 Male	305. 1	92. 3	346. 2
	女性 Female	289. 2	116. 7	305. 1
45~ 59岁 Age 45~ 59	男性 Male	315. 6	82. 5	344. 8
	女性 Female	294. 3	95. 9	298. 7
60~ 69岁 Age 60~ 69	男性 Male	289. 4	86. 9	300. 0
	女性 Female	268. 1	89. 4	265. 9
70岁以上 Over age 70	男性 Male	265. 1	69. 4	282. 8
	女性 Female	232. 7	55. 8	244. 7

2 结果与分析

2.1 毒死蜱在农产品中的残留分布

毒死蜱是一种常用的有机磷农药, 不仅具有有机磷类农药共有的乙酰胆碱酯酶抑制毒性, 还具有生殖毒性及对眼睛和皮肤的刺激作用, 并有潜在的内分泌干扰作用。FAO/WHO 农药残留专家联席会议 (JMPR) 和国际理论与应用化学联合会 (IUPAC) 确定的人体每日允许摄入量 (ADI) 为 $0.01 \text{ mg}/\text{kg}$ 急性参考剂量 (ARfD) 为 $0.1 \text{ mg}/\text{kg}$ ^[12]。

根据 2007–2008 年对来源于浙江市场的

2 115 个蔬菜样品、471 个水果样品和 110 个大米样品的监测, 毒死蜱残留量的分布情况如表 2 所示。毒死蜱的检出率以水果为最高, 达 18.3%, 其次是蔬菜, 大米最低; 分品种来看, 则以芹菜、青菜、桃、葡萄、梨的检出率较高, 为 23.9%~33.6%, 而柑橘样品均未检出, 茄子、甘蓝和大米样品也仅有 1.1%~1.8% 的检出率。但从残留量看, 各百分位点值均以蔬菜为最高, 其次是水果, 大米最低; 分品种看, 以青菜和芹菜中毒死蜱的残留量最高, 其残留均值已超过国家标准^[13], 白菜的 99th百分位点值也超过了国家标准^[13], 四季豆的 99th百分位点值超过了国际食品法典 (CAC) 标准^[14]。

表 2 蔬菜、水果和大米中毒死蜱残留量的分布及残留限量标准

Table 2 Residue level distribution and MRLs of chlorpyrifos in vegetables, fruits and rice

食品种类 Food type	样品数 Na	检出率 Rate/ %	残留量 Residue/(mg/kg)				残留限量标准 MRLs/(mg/kg)	
			平均值	95 th	99 th	99.9 ^h	中国	CAC ^[14]
			Average				China ^[13]	
蔬菜类 Vegetable	2 115	9.3	0.024	0.045	0.395	2.884		
青菜 Greengrocery	224	30.8	0.117	0.630	2.514	3.343	0.1	
白菜 Chinese cabbage	201	7.0	0.014	0.058	0.150	0.367	0.1	
甘蓝 Cabbage	340	1.8	0.005	0.010	0.015	0.022	1	1
芹菜 Celery	146	33.6	0.071	0.343	0.758	2.708	0.05	
黄瓜 Cucumber	318	5.0	0.007	0.010	0.038	0.175		
番茄 Tomato	336	4.2	0.007	0.010	0.044	0.316	0.5	0.5
茄子 Eggplant	179	1.1	0.005	0.010	0.013	0.114		
豇豆 Cowpea	121	11.6	0.016	0.081	0.232	0.239		
四季豆 Kidney bean	250	4.8	0.006	0.010	0.034	0.100		0.01
水果类 Fruits	471	18.3	0.016	0.065	0.165	0.498		
柑橘 Citrus	61	0.0	0.005	0.010	0.005	0.010	2	1
苹果 Apple	128	10.2	0.018	0.058	0.328	0.566	1	1
梨 Pear	180	23.9	0.016	0.067	0.141	0.213	1	1
葡萄 Grape	33	27.3	0.017	0.061	0.144	0.173		0.5
桃 Peach	68	30.9	0.020	0.094	0.132	0.157		0.5
大米 Rice	110	1.8	0.005	0.010	0.011	0.033	0.1	

2.2 氯氰菊酯在农产品中的残留分布

氯氰菊酯是一种常用的拟除虫菊酯类农药,对呼吸道、眼睛和皮肤有刺激作用,并可能具有致癌和生殖毒性及内分泌干扰作用。MPR和UPAC确定的氯氰菊酯的ADI值为0.05 mg/kg,ARND值为0.2 mg/kg^[15]。

来源于浙江市场的2 115个蔬菜样品和196个水果样品中氯氰菊酯残留量的分布情况见表3。总

表 3 蔬菜和水果中氯氰菊酯残留量的分布及残留限量标准

Table 3 Residue level distribution and MRLs of cypermethrin in vegetables and fruits

食品种类 Food type	样品数 Na	检出率 Rate/ %	残留量 Residue/(mg/kg)				残留限量标准 MRLs/(mg/kg)	
			平均值	95 th	99 th	99.9 ^h	中国	CAC ^[14]
			Average				China ^[13]	
蔬菜类 Vegetable	2 115	18.2	0.031	0.146	0.616	1.469		
青菜 Greengrocery	224	52.2	0.137	0.667	1.206	1.714	2	
白菜 Chinese cabbage	210	28.9	0.071	0.370	1.070	1.490	2	
甘蓝 Cabbage	21	3.8	0.005	0.010	0.044	0.133		1
芹菜 Celery	146	17.1	0.034	0.176	0.451	0.963		
黄瓜 Cucumber	318	6.6	0.007	0.018	0.056	0.091	0.2	0.2
番茄 Tomato	336	8.9	0.008	0.025	0.057	0.130	0.5	0.5
茄子 Eggplant	179	13.4	0.008	0.028	0.044	0.072	0.5	0.2
豇豆 Cowpea	121	31.4	0.038	0.170	0.356	0.485	0.5	0.05
四季豆 Kidney bean	250	23.3	0.014	0.055	0.130	0.174	0.5	0.5
水果类 Fruits	196	15.8	0.021	0.087	0.390	0.508		
柑橘 Citrus	61	0	0.005	0.010	0.010	0.010	2	2
苹果 Apple	18	44.4	0.024	0.088	0.102	0.106	2	2
梨 Pear	70	7.1	0.017	0.031	0.293	0.496	2	2
葡萄 Grape	33	15.2	0.010	0.039	0.049	0.051	2	0.5
桃 Peach	13	100	0.092	0.416	0.452	0.460	2	2

体来看,蔬菜中氯氰菊酯的检出率略高于水果,残留量的各百分位点值都是蔬菜高于水果。就品种而言,以青菜、苹果、豇豆、白菜、四季豆的检出率较高,为 23.3%~52.2%,柑橘样品中均未检出,甘蓝、黄瓜、梨和番茄样品也仅有 3.8%~8.9%的检出率;而从残留量看,各百分位点值均以青菜为最高,其中 99.9th 值为 1.714 mg/kg 其次是白菜、桃、芹菜和豇豆。但与我国和 CAC 的残留标准^[13-14] 比较,超标样品主要是豇豆,此外仅有 1 个葡萄样品中的残留量超过 CAC 标准。

2.3 毒死蜥的长期膳食暴露和慢性风险评估

毒死蜥在我国农业部登记使用的范围包括各种蔬菜、水果以及水稻、小麦、玉米、花生、大豆、棉花、桑树、木材、储粮和卫生害虫等。其中蔬菜、水果和稻米是浙江居民的主要食物,分别占食物总量的 22.75%, 9.42% 和 24.69%^[9],且目前毒死蜥在这些作物上的实际用量较大。而在棉花、桑树、木材和卫生上的使用均不会直接造成食物残留;小麦和玉

米在浙江的消费量很少,仅占食物总量的 4.67% 和 0.38%^[9],生产上毒死蜥的使用也不多;花生和大豆作为蔬菜直接食用的部分在膳食结构中已包括在蔬菜中,用于榨油的部分在榨制过程中残留的毒死蜥只有少部分转移到食用油中(大豆油的加工因子为 0.4)^[16]。因此,浙江居民的毒死蜥膳食暴露评估主要考虑蔬菜、水果和大米类食物来源。

浙江省 20 个不同年龄、性别组人群的毒死蜥长期膳食暴露量和慢性风险商如表 4 所示。以各类食物残留量的均值、95th、99th 和 99.9th 百分位点值计算,不同人群的膳食暴露量分别为 0.2~0.4 μg/(kg bw·d)~1.2, 2.0~5.6 和 13.8~33.8 μg/(kg bw·d), 其相应风险商分别为 0.02~0.04, 0.03~0.12, 0.20~0.56 和 1.38~3.38。不同人群间毒死蜥的膳食风险有明显差异,不同年龄组间的风险差异呈现为随年龄的增大而风险下降的趋势,而同一年龄组的不同性别人群间大多呈现为女性风险略大于男性的趋势,仅 11~13 岁和 14~17 岁 2 个年龄组的

表 4 不同人群的毒死蜥长期膳食暴露量和慢性风险商

Table 4 Estimated long-term dietary exposure of chlorpyrifos and its chronic risk quotient for different groups

人群 Group			膳食暴露量				慢性风险商			
			Dietary exposure/[$\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$]				Chronic risk quotient			
			平均值 Average	95 th	99 th	99.9 th	平均值 Average	95 th	99 th	99.9 th
2~ 3岁 Age 2~ 3	男性 Boy	0.4	1.1	5.3	32.4	0.04	0.11	0.53	3.24	
	女性 Girl	0.4	1.2	5.6	33.8	0.04	0.12	0.56	3.38	
4~ 6岁 Age 4~ 6	男性 Boy	0.4	1.0	5.2	32.3	0.04	0.10	0.52	3.23	
	女性 Girl	0.4	1.1	5.4	33.0	0.04	0.11	0.54	3.30	
7~ 10岁 Age 7~ 10	男性 Boy	0.4	0.9	4.6	29.5	0.04	0.09	0.46	2.95	
	女性 Girl	0.4	0.9	4.7	30.1	0.04	0.09	0.47	3.01	
11~ 13岁 Age 11~ 13	男性 Boy	0.3	0.6	3.4	22.2	0.03	0.06	0.34	2.22	
	女性 Girl	0.3	0.6	3.4	21.8	0.03	0.06	0.34	2.18	
14~ 17岁 Age 14~ 17	男性 Boy	0.2	0.5	2.8	18.2	0.02	0.05	0.28	1.82	
	女性 Girl	0.2	0.5	2.7	17.2	0.02	0.05	0.27	1.72	
18~ 29岁 Age 18~ 29	男性 Male	0.2	0.4	2.4	15.8	0.02	0.04	0.24	1.58	
	女性 Female	0.2	0.5	2.6	16.7	0.02	0.05	0.26	1.67	
30~ 44岁 Age 30~ 44	男性 Male	0.2	0.4	2.2	14.4	0.02	0.04	0.22	1.44	
	女性 Female	0.2	0.4	2.5	16.2	0.02	0.04	0.25	1.62	
45~ 59岁 Age 45~ 59	男性 Male	0.2	0.4	2.3	15.3	0.02	0.04	0.23	1.53	
	女性 Female	0.2	0.4	2.4	15.9	0.02	0.04	0.24	1.59	
60~ 69岁 Age 60~ 69	男性 Male	0.2	0.4	2.1	14.4	0.02	0.04	0.21	1.44	
	女性 Female	0.2	0.4	2.3	15.2	0.02	0.04	0.23	1.52	
70岁以上 Over age 70	男性 Male	0.2	0.3	2.0	13.8	0.02	0.03	0.20	1.38	
	女性 Female	0.2	0.3	2.0	13.9	0.02	0.03	0.20	1.39	

女性风险稍低于男性。

评估结果显示, 浙江省不同年龄、性别组人群毒死蜱的长期慢性膳食暴露风险总体上都控制在较低范围内, 只有当其长期食用的大部分食品中的残留量均超过本文所采用的监测资料中的 99th百分位点值 (蔬菜、水果和大米分别为 0.395、0.165 和 0.011 mg/kg) 时, 才可能产生不可接受的较大风险。

在毒死蜱的长期膳食暴露量中, 以来源于蔬菜的贡献率为最高, 其次是水果。按残留均值计算, 蔬

菜、水果和大米对不同人群毒死蜱长期膳食暴露量的贡献率分别为 53.6% ~ 72.5%, 11.6% ~ 33.2% 和 12.8% ~ 16.6%; 按 99.9th百分位点残留值计算, 分别为 85.2% ~ 94.9%, 3.9% ~ 13.7% 和 1.1% ~ 1.3%。蔬菜和水果对不同年龄组人群毒死蜱膳食暴露量的贡献率有明显差异, 大米则变化较小。无论是按照残留均值还是按照 99.9th百分位点残留值计算, 蔬菜的贡献率都有随年龄增加而升高的趋势, 相反, 水果的贡献率则有随年龄增加而下降的趋势 (表 5)。

表 5 不同食物类型对毒死蜱长期膳食暴露量的贡献率

Table 5 Contribution rate of different foods to the long-term dietary exposure of chlorpyrifos

人群 Group		按残留均值计 Calculated with average residue %			按 99.9 th 残留值计 Calculated with 99.9 th residue %		
		蔬菜 Vegetable	水果 Fruit	大米 Rice	蔬菜 Vegetable	水果 Fruit	大米 Rice
2~ 3岁 Age 2~ 3	男性 Boy	54.6	32.1	13.3	85.8	13.1	1.1
	女性 Girl	53.6	33.2	13.3	85.2	13.7	1.2
4~ 6岁 Age 4~ 6	男性 Boy	57.5	28.2	14.3	87.7	11.1	1.2
	女性 Girl	56.4	30.9	12.8	86.6	12.3	1.1
7~ 10岁 Age 7~ 10	男性 Boy	61.2	23.5	15.3	89.8	8.9	1.2
	女性 Girl	61.2	24.2	14.6	89.6	9.2	1.2
11~ 13岁 Age 11~ 13	男性 Boy	62.8	21.2	16.0	90.8	8.0	1.3
	女性 Girl	63.8	21.3	14.9	91.0	7.9	1.2
14~ 17岁 Age 14~ 17	男性 Boy	63.7	19.6	16.6	91.4	7.3	1.3
	女性 Girl	61.0	25.2	13.9	89.3	9.5	1.1
18~ 29岁 Age 18~ 29	男性 Male	67.7	16.3	16.1	93.0	5.8	1.2
	女性 Female	64.6	21.3	14.0	91.1	7.8	1.1
30~ 44岁 Age 30~ 44	男性 Male	69.5	14.0	16.4	93.9	4.9	1.2
	女性 Female	67.2	18.1	14.8	92.4	6.4	1.1
45~ 59岁 Age 45~ 59	男性 Male	71.3	12.4	16.2	94.5	4.3	1.2
	女性 Female	70.0	15.2	14.8	93.6	5.3	1.1
60~ 69岁 Age 60~ 69	男性 Male	70.6	14.1	15.3	94.0	4.9	1.1
	女性 Female	70.0	15.6	14.5	93.6	5.4	1.1
70岁以上 Over age 70	男性 Male	71.6	12.5	15.9	94.6	4.3	1.2
	女性 Female	72.5	11.6	15.9	94.9	3.9	1.1

2.4 氯氰菊酯的长期膳食暴露和慢性风险评估

氯氰菊酯在我国主要登记并大量用于各种蔬菜和水果, 也登记在茶树、大豆、枸杞、小麦、玉米、烟草、棉花、杨树和卫生上使用。其中在棉花、杨树和卫生上使用不会直接造成食物残留; 小麦、玉米、大豆、枸杞和烟草在浙江居民的膳食中所占份额很少, 大豆作为蔬菜鲜食时已包含在蔬菜的消费量中。因此, 浙江省居民的氯氰菊酯长期慢性膳食暴露评估主要考虑蔬菜和水果来源。

浙江省 20 类不同年龄、性别组人群的氯氰菊酯长期膳食暴露量和慢性风险商见表 6。以各类食物的残留均值及 95th、99th和 99.9th百分位点残留值计算, 不同人群的膳食暴露量范围分别为 0.2~0.5、0.8~2.3、3.2~9.8 和 7.3~19.4 μg/(kg b.w·d), 其相应的风险商范围分别为 0.00~0.01、0.02~0.05、0.06~0.20 和 0.15~0.39。即各类人群的氯氰菊酯长期慢性膳食暴露风险都较低, 属可接受水平。但相对来说, 不同人群间的膳食暴露风险有

明显差异: 不同年龄组间呈现为随年龄增大风险下降的趋势; 而同一年龄组不同性别间大多呈现为女性风险略高于男性的趋势, 仅 14~ 17 岁和 70 岁以上 2 个年龄组的女性风险稍低于男性; 11~ 13 岁年龄组的不同性别间基本无差异。

在氯氰菊酯的长期膳食暴露量中, 来源于蔬菜的贡献率要明显高于水果。按残留均值计算, 蔬菜和水果对不同人群氯氰菊酯膳食暴露量的贡献率分

别为 61. 4% ~ 86. 0% 和 14. 0% ~ 38. 6%, 按 99th 百分位点值计算的贡献率分别为 75. 7% ~ 92. 3% 和 7. 7% ~ 24. 3%。蔬菜和水果对不同年龄组人群氯氰菊酯长期膳食暴露量的贡献率有明显差异, 无论是按照残留均值还是按照 99th 百分位点值计算, 蔬菜的贡献率都有随年龄增加而升高的趋势, 相反, 水果的贡献率则有随年龄增加而下降的趋势 (表 7)。

表 6 不同人群的氯氰菊酯长期膳食暴露量与慢性风险商

Table 6 Estimated long-term dietary exposure of cypemethrin and its chronic risk quotient for different group

人群 Group		膳食暴露量				慢性风险商			
		Dietary exposure/[μg/(kg bw • d)]				Chronic risk quotient			
		平均值 Average	95 th	99 th	99.9 th	平均值 Average	95 th	99 th	99.9 th
2~ 3岁 Age 2~ 3	男性 Boy	0.5	2.1	9.3	18.5	0.01	0.04	0.19	0.37
	女性 Girl	0.5	2.3	9.8	19.4	0.01	0.05	0.20	0.39
4~ 6岁 Age 4~ 6	男性 Boy	0.5	2.1	8.9	18.1	0.01	0.04	0.18	0.36
	女性 Girl	0.5	2.2	9.3	18.7	0.01	0.04	0.19	0.37
7~ 10岁 Age 7~ 10	男性 Boy	0.4	1.8	7.7	16.2	0.01	0.04	0.15	0.32
	女性 Girl	0.4	1.8	7.9	16.5	0.01	0.04	0.16	0.33
11~ 13岁 Age 11~ 13	男性 Boy	0.3	1.3	5.7	12.1	0.01	0.03	0.11	0.24
	女性 Girl	0.3	1.3	5.6	11.8	0.01	0.03	0.11	0.24
14~ 17岁 Age 14~ 17	男性 Boy	0.2	1.1	4.6	9.8	0.00	0.02	0.09	0.20
	女性 Girl	0.2	1.1	4.6	9.5	0.00	0.02	0.09	0.19
18~ 29岁 Age 18~ 29	男性 Male	0.2	0.9	3.9	8.4	0.00	0.02	0.08	0.17
	女性 Female	0.2	1.0	4.3	9.1	0.00	0.02	0.09	0.18
30~ 44岁 Age 30~ 44	男性 Male	0.2	0.8	3.5	7.6	0.00	0.02	0.07	0.15
	女性 Female	0.2	0.9	4.0	8.7	0.00	0.02	0.08	0.17
45~ 59岁 Age 45~ 59	男性 Male	0.2	0.8	3.6	8.0	0.00	0.02	0.07	0.16
	女性 Female	0.2	0.9	3.8	8.4	0.00	0.02	0.08	0.17
60~ 69岁 Age 60~ 69	男性 Male	0.2	0.8	3.4	7.6	0.00	0.02	0.07	0.15
	女性 Female	0.2	0.9	3.7	8.1	0.00	0.02	0.07	0.16
70岁以上 Over age 70	男性 Male	0.2	0.8	3.3	7.3	0.00	0.02	0.07	0.15
	女性 Female	0.2	0.8	3.2	7.3	0.00	0.02	0.06	0.15

3 结论与讨论

3.1 浙江居民的毒死蜱和氯氰菊酯膳食暴露风险

尽管近年来水果、蔬菜等农产品中比较普遍地存在毒死蜱和氯氰菊酯残留, 并偶有超标情况出现。但风险评估结果显示, 浙江各类不同年龄、性别组人群的毒死蜱长期膳食暴露带来的慢性风险仍控制在较低范围内, 只有在长期食用毒死蜱残留超过本文所采用监测资料中的 99th 百分位点值时, 才可能产生不可接受的较高风险。相对来讲, 氯氰菊酯的膳食暴露风险更低, 即使长期持续食用该监测资料中的最高残留量产品, 其膳食暴露风险仍是可接受的。

3.2 膳食暴露评估中的不确定因素

要对一个大的人群的膳食暴露风险做出确切的评估是非常困难的, 本文的评估结论也存在很多的不确定因素。可能会导致高估风险的因素主要有: ①农药膳食暴露量按食品大类计算, 而高残留仅出现在少数产品 (如蔬菜中的青菜、芹菜等) 中 (表 2 表 3)。②膳食暴露评估所依据的是未经烹调加工的市场产品中的残留数据, 而大米和绝大多数的蔬菜产品食用前均需进行烹调加工, 其中的很大一部分残留农药会在烹调加工 (包括加工前的清洗) 过程中流失或分解。据 Lee^[17] 的研究, 大米中残留的毒死蜱在淘洗 3 次后有 64. 62% 会随淘米水迁移出

表 7 不同食物类型对氯氰菊酯长期膳食暴露量的贡献率

Table 7 Contribution rate of different foods to the long-term dietary exposure of cypemethrin

人群 Group		按残留均值计		按 99.9 th 百分位点残留值计	
		Calculated with average residue %		Calculated with 99.9 th residue %	
		蔬菜 Vegetable	水果 Fruit	蔬菜 Vegetable	水果 Fruit
2~ 3岁 Age 2~ 3	男性 Boy	62.6	37.4	76.6	23.4
	女性 Girl	61.4	38.6	75.7	24.3
4~ 6岁 Age 4~ 6	男性 Boy	66.7	33.3	79.7	20.3
	女性 Girl	64.2	35.8	77.9	22.1
7~ 10岁 Age 7~ 10	男性 Boy	71.9	28.1	83.4	16.6
	女性 Girl	71.3	28.7	82.9	17.1
11~ 13岁 Age 11~ 13	男性 Boy	74.4	25.6	85.1	14.9
	女性 Girl	74.6	25.4	85.2	14.8
14~ 17岁 Age 14~ 17	男性 Boy	76.1	23.9	86.2	13.8
	女性 Girl	70.5	29.5	82.4	17.6
18~ 29岁 Age 18~ 29	男性 Male	80.4	19.6	88.9	11.1
	女性 Female	74.9	25.1	85.4	14.6
30~ 44岁 Age 30~ 44	男性 Male	83.0	17.0	90.5	9.5
	女性 Female	78.5	21.5	87.8	12.2
45~ 59岁 Age 45~ 59	男性 Male	85.0	15.0	91.7	8.3
	女性 Female	81.9	18.1	89.9	10.1
60~ 69岁 Age 60~ 69	男性 Male	83.1	16.9	90.6	9.4
	女性 Female	81.6	8.4	89.7	10.3
70岁以上 Over age 70	男性 Male	84.9	15.1	91.7	8.3
	女性 Female	86.0	14.0	92.3	7.7

去,再经蒸煮后又有 19.04% 随蒸汽迁移出去,2项处理共去除了大米中 71.38% 毒死蜱。另一方面,可能会导致低估风险的因素主要有:①本文仅针对毒死蜱和氯氰菊酯进行了单个农药的风险评估,而没有考虑具有相同毒性机理农药(如有机磷类)的累积性暴露风险^[18];②本研究中毒死蜱、氯氰菊酯的 ADI值和 ARD 值均采用 JMPR 和 IUPAC 的推荐值,该推荐值是基于种间差异和个体间差异各 10 倍的安全系数(共 100 倍)得到的,而美国食品质量保护法(FQPA)要求对婴幼儿等敏感人群额外增加最大 10 倍的安全系数,除非有可靠、充分的数据证明其对婴幼儿不产生危害或危害可忽略不计^[19]。

另外,暴露量评估中采用的膳食结构数据为“2002 年中国居民营养与健康状况调查资料”,这是我国目前膳食结构系统性调查的最新数据(一般每隔 10 年调查 1 次)。自 20 世纪 90 年代以来,我国居民粮谷类食物的人均消费量保持缓慢下降的趋势,蔬菜类也略有下降,水果类基本稳定或略有增加^[20-21]。因此,我们认为采用 2002 年的蔬菜、水果和大米消费量数据来评估近年的毒死蜱和氯氰菊酯暴露量,可能略有高估,但造成的偏差很小,可以

忽略。
3.3 膳食暴露的主要来源与风险管理

蔬菜类食品是浙江居民毒死蜱和氯氰菊酯膳食暴露的主要来源,在不同人群中其贡献率大多超过 80%。建议这 2 种农药的风险管理应该在对蔬菜、水果和大米等农产品进行普遍监管的基础上,重点控制其在青菜、芹菜和白菜等蔬菜中的残留,以有效降低毒死蜱和氯氰菊酯的膳食暴露风险。

参考文献:

[1] European Community Commission Regulation 2008/149/EC. Amending Regulation (EC) No 396/2005 of the European Parliament and of the Council by establishing Annexes II, III and IV setting maximum residue levels for products covered by Annex I thereto [J]. Official Journal of the European Union, 2008 (L58): 1- 398.

[2] Agricultural Marketing Service, USDA. Pesticide Data Program: Annual Summary, Calendar Year 2007 [M]. Washington DC: Agricultural Marketing Service 2008

[3] World Health Organization Guidelines for Predicting Dietary Intake of Pesticide Residues (Revised) [M]. Switzerland World Health Organization, 1997

- [4] RUDÉN C. Principles and practices of health risk assessment under current EU regulations [J]. *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 2006, 44: 14–23
- [5] CHUN O K, KANG H G. Estimation of risks of pesticide exposure by food intake to Koreans [J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2003, 41: 1063–1076
- [6] CALDAS E D, SOUZA L C K R. Chronic dietary risk for pesticide residues in food in Brazil: an update [J]. *Food Additives and Contaminants*, 2004, 21(11): 1057–1064.
- [7] SUHRE F B. Pesticide residues and acute risk assessment: the US EPA approach [J]. *Food Additives and Contaminants*, 2000, 17(7): 569–573.
- [8] Institute of Quality Standards and Testing Technology for Agro-Products, Chinese Academy of Agricultural Science (中国农业科学院农业质量标准与检测技术研究所). *Risk Assessment for Quality and Safety of Agro-foods: Principles, Methodologies and Applications (农产品质量安全风险评估: 原理、方法和应用)* [M]. Beijing (北京): Standards Press of China (中国标准出版社), 2007.
- [9] JIN Shui-gao (金水高). The Tenth Report of Nutrition and Healthy Status for China Residents Nutrition and Healthy Status of Annual 2002 (中国居民营养与健康状况调查报告之十: 2002年营养与健康状况数据集) [M]. Beijing (北京): People's Medical Publishing House (人民卫生出版社), 2008.
- [10] Ministry of Agriculture of the People's Republic of China (中华人民共和国农业部). NY/T 761–2008. Pesticide multiresidue screen methods for determination of organophosphorus pesticides, organochlorine pesticides, pyrethroid pesticides and carbamate pesticides in vegetables and fruits (蔬菜和水果中有机磷、有机氯、拟除虫菊酯和氨基甲酸酯类农药多残留的测定) [S]. Beijing (北京): China Agriculture Press (中国农业出版社), 2008.
- [11] Ministry of Health of the People's Republic of China Standardization Administration of the People's Republic of China (中华人民共和国卫生部, 中国国家标准化管理委员会). GB/T 5009-145–2003 Determination of Organophosphorus and carbamate pesticide multiresidues in vegetable foods (植物性食品中有机磷和氨基甲酸酯类农药多种残留的测定) [S]. Beijing (北京): Standards Press of China (中国标准出版社), 2003.
- [12] The Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Residues (JMPR). *Pesticide Residues in Food 1999: Evaluations Part II: Toxicological* [M]. Rome: WHO/FAO, 1999.
- [13] Ministry of Health of the People's Republic of China Standardization Administration of the People's Republic of China (中华人民共和国卫生部, 中国国家标准化管理委员会). GB 2763–2005. Maximum Residue Limits for Pesticides in Food (食品中农药最大残留限量) [S]. Beijing (北京): Standards Press of China (中国标准出版社), 2005.
- [14] Codex Alimentarius Commission. CAC MRL 1–2009. Maximum residue limits for pesticides in food [S/OL]. (2009-03-30). http://www.codexalimentarius.net/mrls/pesticides/jsp/pest_q-e.jsp
- [15] The Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Residues (JMPR). *Pesticide Residues in Food 2006: Evaluations Part II–Toxicological* [M]. Rome: WHO/FAO, 2006.
- [16] The Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Residues (JMPR). *Pesticide Residues in Food 2004: Evaluations Part I: Residues* [M]. Rome: WHO/FAO, 2004.
- [17] LEE S R. Analysis before and after cooking processes of a trace chlorpyrifos spiked in polished rice [J]. *J. Agri Food Chem*, 1991, 39: 906–908.
- [18] BOON P E, VAN-DER-VOET H, VAN-RAAIJ M T, et al. Cumulative risk assessment of the exposure to organophosphorus and carbamate insecticides in the Dutch diet [J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2008, 46(9): 3090–3098.
- [19] SCHEU PLEN R J. The FQPA: A challenge for science policy and pesticide regulation [J]. *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 2000, 31: 248–266.
- [20] ZHAI Feng-ying (翟凤英), HE Yu-na (何宇纳), MA Guan-sheng (马冠生), et al. 中国城乡居民食物消费现状及变化趋势 [J]. *Chin J Epidemiol* (中华流行病学杂志), 2005, 26(7): 485–488.
- [21] LI Zhen-in (李哲敏). 近 50 年中国居民食物消费与营养发展的变化特点 [J]. *Resources Science (资源科学)*, 2007, 29(1): 27–35.

(责任编辑: 唐 静)