

DOI: 10.19812/j.cnki.jfsq11-5956/ts.20250422005

引用格式: 连莹莹, 方彦飞, 韩永红, 等. 邯郸市谷物制品中26种金属多元素监测与健康风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2025, 16(15): 157-166.

LIAN YY, FANG YF, HAN YH, *et al.* Monitoring and health risk assessment of 26 kinds of metal multi-elements in cereals in Handan City [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2025, 16(15): 157-166. (in Chinese with English abstract).

邯郸市谷物制品中26种金属多元素监测与健康风险评估

连莹莹, 方彦飞, 韩永红, 闫慧敏, 赵艳, 张璐, 李伟昊*

(邯郸市疾病预防控制中心, 邯郸 056002)

摘要: **目的** 了解邯郸市售谷物制品中26种金属多元素(Pb、Cd、Hg、As、Cr、Al、Mn、Cu、Ba、V、Se、Sb、Ni、Sn、Li、B、Zn、K、Na、Ca、Mg、Fe、Sr、Mo、Co、Rb)的含量分布, 并对其健康风险评估。**方法** 采用电感耦合等离子体质谱法(inductively coupled plasma mass spectrometry, ICP-MS)对市售的51份谷物制品(小麦与玉米)进行26种金属多元素检测, 对检测结果进行统计分析, 结合单因子污染指数、靶标危害指数、致癌指数和膳食摄入量对常量与微量元素进行营养与暴露风险评估。**结果** 方法线性良好, 准确度与灵敏度高。谷物中除Hg和Li元素外, 其余24种金属多元素均有检出。主成分分析和相关性分析显示小麦与玉米存在种间差异, 不同元素的相关性有区别。Pb、Cd、Hg、As、Cr 5种重金属污染水平整体处于安全水平, 19种金属的靶标危害指数和Pb致癌风险指数远低于警戒值, 处于安全水平, As的致癌风险评估处于潜在风险。营养膳食评估显示谷物富含K和Mg, 低Na, Cr的每日摄入量为推荐摄入量的3倍左右, 需要引起关注。**结论** 本研究建立的方法可有效用于谷物多元素的测定, 为邯郸市居民金属多元素健康评估提供了科学依据, 邯郸市谷物制品健康评估水平整体处于较为健康水平, 但需持续关注Cr和As元素的健康风险。

关键词: 谷物; 玉米; 小麦; 电感耦合等离子体质谱法; 重金属; 风险评估

Monitoring and health risk assessment of 26 kinds of metal multi-elements in cereals in Handan City

LIAN Ying-Ying, FANG Yan-Fei, HAN Yong-Hong, YAN Hui-Min, ZHAO Yan,
ZHANG Lu, LI Wei-Hao*

(Handan Centre for Disease Control and Prevention, Handan 056002, China)

ABSTRACT: Objective To investigate the distribution of 26 kinds of metal elements (Pb, Cd, Hg, As, Cr, Al, Mn, Cu, Ba, V, Se, Sb, Ni, Sn, Li, B, Zn, K, Na, Ca, Mg, Fe, Sr, Mo, Co, Rb) and assess the dietary risk with cereals in

收稿日期: 2025-04-22

基金项目: 邯郸市科学技术研究与发展计划项目(23422083170)

第一作者: 连莹莹(1985—), 女, 硕士, 副主任技师, 主要研究方向为食品安全风险监测。E-mail: violet_lianying@foxmail.com

*通信作者: 李伟昊(1976—), 男, 博士, 主任技师, 主要研究方向为食品安全。E-mail: hdlwh@alumni.tongji.edu.cn

Handan City. **Methods** A total of 51 cereal samples (wheat and maize) were analyzed for 26 kinds of metal elements using inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). Statistical analysis was performed on the detection results, and nutritional and exposure risk assessments were conducted for macro- and trace elements using the individual pollution index, target hazard quotient, carcinogenic risk, and estimated daily intake. **Results** The method demonstrated good linearity, high accuracy, and sensitivity. Among the 26 kinds of metal elements, 24 kinds of metal elements were detected in the cereal samples, except for Hg and Li. Principal component analysis and correlation analysis revealed interspecies differences between wheat and maize, as well as distinct correlations among different elements. The contamination levels of 5 kinds of heavy metals (Pb, Cd, Hg, As, Cr) were within safe limits. The target hazard index of 19 kinds of metal elements and the carcinogenic risk index for Pb were significantly below threshold levels, indicating no health risks, but the carcinogenic risk assessment for As suggested potential health risks. Nutritional assessment showed that the cereals were rich in K and Mg, but low in Na. However, Cr exposure reached nearly 300% of the adequate daily intake, indicating a significant health concern. **Conclusion** The established method is effective for multi-element analysis in cereals. This research findings provide updated dietary intake assessment of multi-elements of Handan adult consumers. The dietary assessment indicates that intake of cereals in Handan City poses no significant health risks, but particular attention should be paid to Cr and As contamination.

KEY WORDS: cereals; maize; wheat; inductively coupled plasma mass spectrometry; heavy metals; risk assessment

0 引言

联合国世界粮农组织 (Food and Agriculture Organization of the United Nation, FAO) 统计显示, 我国是世界上小麦第一生产国和消费国, 玉米第二大生产国和消费国。稻谷是我国居民口粮消费的主体, 占口粮消费量的 60% 以上。其中玉米和小麦是北方地区居民能量摄入主要来源^[1]。谷物制品除了作为碳水化合物, 还富含蛋白质、维生素和各种矿物质^[2]。《中国居民膳食指南 2022》建议成年人每天摄入谷类食物 200~300 g, 推荐全谷物食物 50~150 g。根据在人体中的含量, 元素可分为常量元素 (>0.01%) 和微量元素 (<0.01%)。世界卫生组织 (World Health Organization, WHO) 将微量元素分为必需微量元素、可能必需微量元素和潜在毒性元素。根据 WS/T 578.2—2018《中国居民膳食营养素参考摄入量 第 2 部分: 常量元素》、WS/T 578.3—2017《中国居民膳食营养素参考摄入量 第 3 部分: 微量元素》和《中国居民膳食营养素参考摄入量 2023 版》^[3] 中规定, Ca、Na、K、Mg 这 4 种为常量营养金属元素, Fe、Zn、Cu、Se、Cr、Co、Mo 这 7 种为必需微量金属元素; B、Mn、Ni、V 这 4 种为可能必需微量金属元素。我国 GB 2762—2022《食品安全国家标准 食品中污染物限量》明确了谷物中 5 类重金属污染物 Pb、Cd、Hg、As、Cr 的限量值。

As、Pb、Cd、Cr 和 Hg 是对人体有危害的金属, 可造成儿童生长发育迟缓、肾脏损伤^[4]、贫血、心血管疾病等^[5]。目前对谷物类食品的重金属污染研究较多, 有研究发现安徽省小麦食品^[6]中重金属综合污染指数为轻度污染, 河南

省部分玉米^[7]和华北地区^[8]部分谷物中 Pb 含量超标等。同时, 多种常量和微量元素在人类健康和疾病中起着重要的作用^[9], 根据它们在新陈代谢中的作用机制的不同, 金属元素显示出营养和毒理学多重效应^[10]。因此对玉米和小麦中多种元素进行分析研究, 对于我国居民的饮食健康具有十分重要的意义。金属元素检出方法众多, 有原子荧光光谱法^[11]、石墨炉原子吸收光谱法、火焰原子吸收光谱法^[11]、电感耦合等离子体发射光谱法 (inductively coupled plasma/optical emission spectrometry, ICP-OES)^[12]、电感耦合等离子体质谱法 (inductively coupled plasma mass spectrometry, ICP-MS) 法等。其中 ICP-MS 方法^[13] 检出灵敏度高, 线性好, 可以一次性检测多种金属与类金属元素, 本研究采用该方法对邯郸地区的玉米与小麦样品的 26 种金属多元素进行含量检测。目前邯郸地区谷类食品中金属多元素的研究结果较少, 本研究结合内梅罗污染指数法^[14]、靶标危害指数 (target hazard quotient, THQ)^[15] 与危害指数 (hazard index, HI)、致癌风险指数 (carcinogenic risk, CR)^[16]、膳食营养素参考 (dietary reference intakes, DRIs)^[17] 等多项指标, 对金属多元素摄入的健康风险进行评估, 结合相关性分析、主要成分分析、非参数检验等多种统计方法分析谷物制品中金属多元素的分布情况和种间特征, 为邯郸地区食品安全检测和质量安全标准制定等提供科学依据和理论支持。

1 材料与方法

1.1 样品来源

在邯郸地区大型超市、小型超市、农贸市场、网店、

种植环节共采集 51 份谷物制品, 包含 26 份玉米面样品与 25 份小麦粉样品, 采样样品范围覆盖农村与城市地区, 样品以邯郸本地为主, 其余均来自河北省其他地市。

1.2 试剂

ICP-MS 分析用多元素(Al, As, B, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Li, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, Pb, Rb, Sb, Se, Sn, Sr, V, Zn)标准溶液、ICP-MS 分析内标(Bi, Ge, In, Sc, Y)标准溶液(质量浓度 100 μg/mL, 国家有色金属及电子材料分析测试中心); Hg 标准溶液(质量浓度为 1000 μg/mL, 中国计量科学研究院); 硝酸(电子纯, 国药集团化学试剂有限公司); 双氧水(优级纯, 上海沃凯生物技术有限公司); 大米成分分析标准物质、河南小麦成分分析标准物质(30 g/瓶, 中国地质科学院地球物理地球化学勘查研究所); 所有实验用水均为超纯水。

1.3 仪器与设备

NexIon-350 x 型号电感耦合等离子体质谱仪(美国铂金埃尔默公司); Ethos Up 微波消解仪(意大利迈尔斯通公司); AE-240 万分之一天平(瑞士梅特勒托利多公司)。

1.4 实验方法

1.4.1 样品制备与标液配制

称取 0.3 g(精确至 0.001 g)充分混匀的谷物制品于微波消解罐中, 按照 GB 5009.268—2016《食品安全国家标准 食品中多元素的测定》第一法 ICP-MS 法进行消解, 用超纯水定容至 25 mL, 混匀备用, 同时做空白实验。微波消解的程序设定如下: 从室温升至 120 °C, 升温时间 5 min, 恒温 5 min; 从 120 °C 升至 160 °C, 升温时间 5 min, 恒温 10 min; 从 160 °C 升至 200 °C, 升温时间 5 min, 恒温 25 min。用 1% 的硝酸溶液逐级稀释混合标准溶液和内标使用液, Hg 标准溶液现用现配。

1.4.2 ICP-MS 上机检测

仪器开机后抽真空, 待真空度满足条件后, 进行调谐, 仪器参数设置如下: 射频功率 1600 W; 等离子体气流量 19 L/min; 辅助气流量 1.2 L/min; 雾化器流量 1 L/min; 采集模式: 跳峰扫描; 重复测定 3 次。编辑测定方法, 根据待测元素的性质选择相应的内标元素, 采用动能主导碰撞模式(kinetic energy dominated collision mode, KED)在线加入内标, 进行各元素的分析。26 种金属元素的同位素质荷比(m/z)和内标元素见表 1。

1.4.3 质量控制

实验过程中采取有证标准物质测定、试剂空白测定、样品空白测定、加标回收等多种质控措施, 保证检测数据的可靠性。

1.5 评价标准

1.5.1 判断依据

根据元素在人体中的含量, 元素可分为常量元素

(>0.01%)和微量元素(<0.01%)。参考 WS/T 578.2—2018 和 WS/T 578.3—2017 对谷物中的营养素进行评价。参考 GB 2762—2022 对谷物中的重金属污染物进行评价。

表 1 26 种元素的同位素和内标元素
Table 1 Isotopes and internal standard elements of 26 kinds of elements

元素	质荷比 (m/z)	内标	元素	质荷比 (m/z)	内标
B	11	⁴⁵ Sc	Na	23	⁴⁵ Sc
Mg	24	⁴⁵ Sc	Al	27	⁴⁵ Sc
K	39	⁴⁵ Sc	Ca	43	⁴⁵ Sc
Li	7	⁴⁵ Sc	V	51	⁴⁵ Sc
Cr	53	⁴⁵ Sc	Mn	55	⁴⁵ Sc
Fe	56	⁴⁵ Sc	Co	59	⁴⁵ Sc
Ni	60	⁷² Ge	Cu	63	⁷² Ge
Zn	66	⁷² Ge	As	75	⁷² Ge
Se	78	⁷² Ge	Rb	85	⁷² Ge
Sr	88	⁷² Ge	Mo	95	¹¹⁵ In
Cd	111	¹¹⁵ In	Sn	118	¹¹⁵ In
Sb	121	¹¹⁵ In	Ba	137	¹¹⁵ In
Hg	202	¹¹⁵ In	Pb	208	¹¹⁵ In

1.5.2 内梅罗指数法

采用单因子污染指数法(individual pollution index, P_i)和综合污染指数法(combined pollution index, $P_{综}$)对金属污染程度进行分级评价, 计算见公式(1)~(2)。

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

$$P_{综} = \sqrt{\frac{P_{max}^2 + P_{ave}^2}{2}} \quad (2)$$

式中: P_i 为第 i 个元素的污染指数, 对单个金属的污染程度进行描述; C_i 表示样品中该金属的实测值, mg/kg; S_i 表示该金属的限量值, mg/kg; $P_{综}$ 为所有金属的综合污染指数; P_{max} 为各单因子污染指数中的最大值; P_{ave} 为各单因子污染指数的平均值。结合参考文献, P_i 和 $P_{综}$ 的评价分级标准见表 2。

表 2 金属污染指数分级标准
Table 2 Grading standards for metal pollution index

级别	P_i	等级	$P_{综}$	等级
1	$P_i \leq 0.7$	安全	$P_{综} \leq 0.7$	安全
2	$0.7 < P_i \leq 1$	警戒	$0.7 < P_{综} \leq 1$	警戒
3	$1 < P_i \leq 2$	轻污染	$1 < P_{综} \leq 2$	轻污染
4	$2 < P_i \leq 3$	中度污染	$2 < P_{综} \leq 3$	中度污染
5	$P_i \geq 3$	重度污染	$P_{综} \geq 3$	重度污染

1.5.3 健康风险评估

(1)摄入量评估

对金属的每日摄入量(estimated daily intake, EDI)进行评估, 计算公式见式(3)。

$$EDI = \frac{C \times IRD \times EF \times ED}{BW \times AT} \times 10^{-3} \quad (3)$$

式中: EDI 为每日摄入量, mg/(kg·d); C 为某种金属的平均含量, mg/kg; IRD 为该类食品的每日摄入量(daily intake rates), g/d, 根据中国疾病预防控制中心营养与健康所数据年鉴, 我国居民粮谷类平均摄入量为 305.8 g, 作为谷物的摄入量进行计算; EF 为暴露频率(exposure frequency), 365 d/year; ED 为暴露时间(exposure duration), 采用平均寿命 70 年进行计算; BW 为人群的平均体重(body weight), 64.3 kg^[14]; AT 为平均接触非致癌物时间(average exposure time), 定为平均寿命 70×365 d。

(2) THQ 与 HI 评估

通过 THQ 来评估单个元素引起的饮食摄入健康风险, HI 来评估金属多元素共同作用引起的健康风险, 计算见公式(4)~(5)。

$$THQ = \frac{EDI}{RfD} \quad (4)$$

$$HI = \sum_{i=1}^n THQ \quad (5)$$

式中: RfD 为经口摄入参考剂量(oral reference dose), 各金属的参考摄入量^[14,18-19]见表 3。当 THQ 和 HI 值<1 时, 说明人群没有较大的健康风险; 当 THQ 和 HI 值>1 时, 说明有害因素暴露对人群具有严重健康风险, 其值越大, 健康风险越高。

表 3 金属多元素的 RfD
Table 3 RfD of metal multi-elements

金属	参考剂量 RfD/[mg/(kg·d)]	金属	参考剂量 RfD/[mg/(kg·d)]
As	0.0003	Hg	0.0003
Al	1.0000	Mn	0.1400
B*	9.6000	Mo	0.0050
Ba	0.2000	Ni	0.0054
Cd	0.0005	Pb	0.0014
Co	0.0300	Sb	0.0004
Cr	0.0030	Se	0.0050
Cu	0.0050	V*	7.7000
Fe	0.3000	Zn	0.3000
Li	0.0020		

注: *表示目前尚无 RfD 值, 以最小观测有毒剂量(lowest observed adverse effect level, LOAEL)或未观察到有害作用剂量(no observed adverse effect level, NOAEL)值代替。总 As 的 RfD 值参考无机砷。

(3)致癌风险评估

通过 CR 来评估致癌因子的致癌风险, 计算见公式(6)。

$$CR = EDI \times CSF_0 \quad (6)$$

式中: CSF₀ 为致癌斜率因子(oral carcinogenic slope factor)^[14], 由美国环保局(U.S. Environmental Protection Agency, USEPA)制定, [mg/(kg·d)]⁻¹, 各元素的致癌斜率因子^[14,18]分别为: As 1.5(无机砷); Pb 0.0085。CR 值的判定标准如下: CR>1×10⁻⁴时, 高风险; 1×10⁻⁶<CR<1×10⁻⁴, 潜在风险; CR<1×10⁻⁶, 风险较低或无风险^[16]。

(4)营养素膳食摄入评估

参考 GB 28050—2025 标准, 对谷物中人体必需元素含量采用每 100 g 食品中可食部分的具体数值进行标示。以 WS/T 578.2—2018、WS/T 578.3—2018 和《中国居民膳食营养素参考摄入量 2023》推荐的膳食营养素参考摄入量(dietary reference intakes, DRIs)^[20]对每日营养素摄入量进行膳食摄入量评估。计算公式见式(7)。

$$DRIs/\% = \frac{C \times IRD}{DRIs} \times 10^{-3} \times 100\% \quad (7)$$

式中: DRIs 指数包括: 平均需要量(estimated average requirement, EAR)、推荐摄入量(recommended nutrient intake, RNI)、适宜摄入量(adequate intake, AI)、可耐受最高摄入量(tolerable upper intake level, UL); C 为测定的该营养素的含量, mg/kg; IRD 为谷物食品的每日摄入量, 305.8 g/d。具体各类 DRIs 值见表 4。

表 4 各营养素的 DRIs 指数(mg/d)
Table 4 DRIs index of each nutrient (mg/d)

元素	EAR	RNI	UL	AI
Ca	650	800	2000	-
K	-	-	-	2000
Na	-	-	-	1500
Mg	280	330	-	-
Fe	男: 9/女: 15	男: 12/女: 20	42	-
Zn	男: 10.4/女: 6.1	男: 12.5/女: 7.5	40	-
Se	0.05	0.06	0.4	-
Cu	0.60	0.8	8.0	-
Mn	-	-	11	男: 4.5/女: 4.0
Mo	0.085	0.1	0.9	-
Cr	-	-	-	0.03

注: -为目前无相关标准。DRIs 相关数值以 18 岁人群数据为参考。

1.6 数据处理

采用 Excel 2021 软件和 SPSS 22.0 软件进行数据统计与分析, Prism 10 和 Origin 2024 软件绘图。低于检出限的数据, 按照检出限的 1/2 进行统计分析。

2 结果与分析

2.1 方法学评价

26 种金属多元素标准曲线相关系数 r 在 0.9991~1.0000 之间, 检出限与 GB 5009.268—2016 第一法一致, 回收率范围在 88.8%~103.5%, 有证标准物质测定值在有效区间, 说明实验方法准确度良好。

2.2 谷物中各元素的总体检出情况

51 种谷物样品中共有 24 种金属元素检出, Hg 和 Li 元素均未检出。其中: Ba、Ca、K、Al、Mg、Mn、Mo、Ni、Sr、Fe、Cu、Cr 这 12 种元素的检出率为 100%, V、Cd、Co、Na、Pb、Se、Zn、As、Rb 这 9 种元素的检出值大于 50%, Sb、Sn 和 B 这 3 种元素的检出率小于 50%。谷物所有检出元素中平均含量最高元素为 K (1764 mg/kg), 含量最低元素为 V (0.0052 mg/kg)。具体检出情况见表 5。

2.3 谷物中金属多元素含量的统计学分析

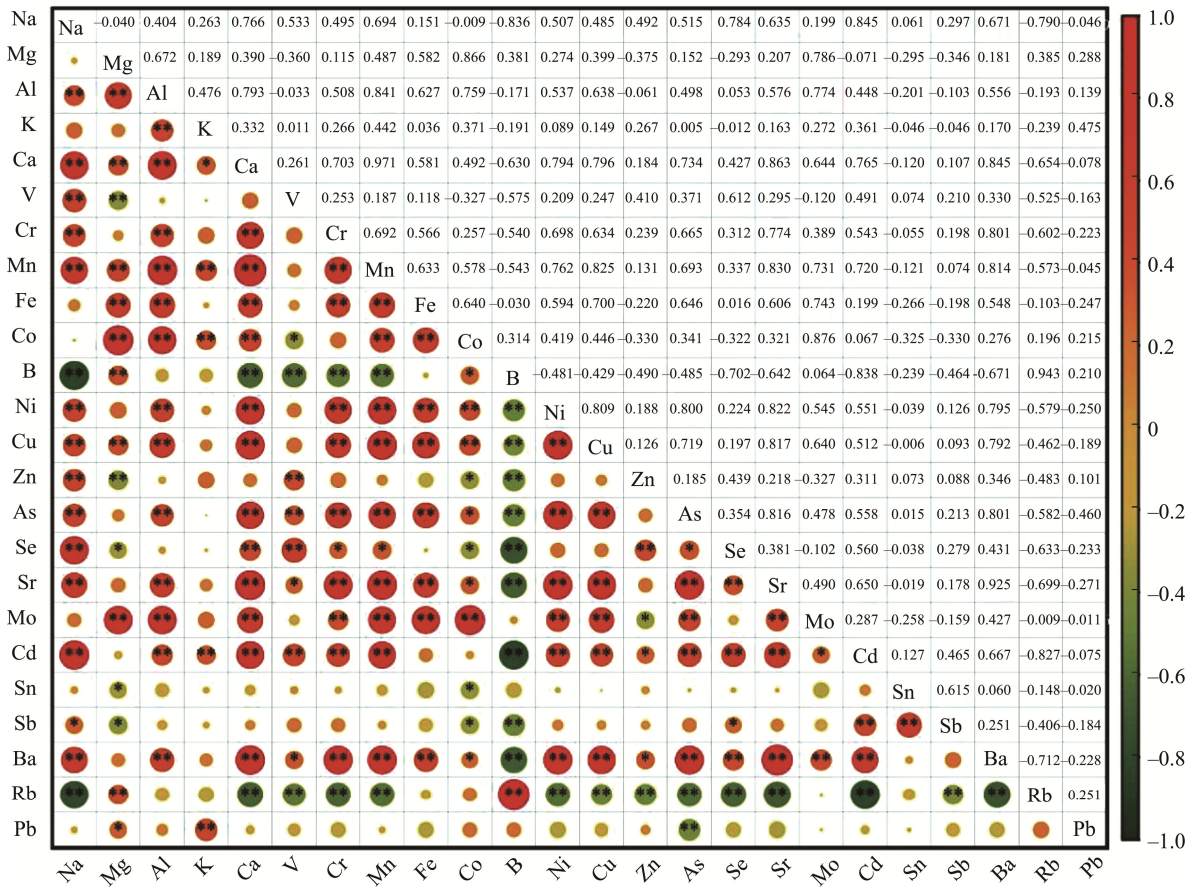
以检出的除 Hg 和 Li 外的 24 种金属元素含量为指标, 使用 Origin 2024 软件对 51 份谷物样品进行了相关性分析, 根据金属含量分布特征, 分析方法^[18]选择 Spearman, 结果显示 Na、Al、Ca、V、Cr、Mn、B、Ni、Cu、Zn、As、Se、Sr、Cd、Ba、Rb 互为显示显著相关, 协同作用强; Mg 和 Al、Ca、V、Mn、Fe、Co、B、Cu、Zn、Se、Mo、Sn、Sb、Rb、Pb 有显著相关; Al、K、Co、Mn 互为显著相关; Ca、Cr、Fe、Mo 互为显著相关; V 与 Co 显著相关; Fe 与 Co、Ni、Cu、As、Sr、Ba、Mo 互为显著相关。其他元素间相关性较弱。具体相关性分析结果见图 1。

采用 SPSS 22.0 对所有的谷物样品进行主成分分析 (principal component analysis, PCA), 通过 PCA 的得分图可看出小麦与玉米组别数据存在显著性差异; 载荷图可看出各元素的相关性, 两个元素指标间夹角越大, 相关性越低, 夹角越小, 夹角接近 0 度, 相关性越强, 载荷图结果与图 1 中 Spearman 分析结果基本一致。具体结果见图 2。

表 5 谷物中各元素检出情况($n=51$)
Table 5 Detection status of various elements in cereals ($n=51$)

元素	检出率/%	含量分布/(mg/kg)						
		P_{25}	P_{50}	P_{75}	P_{95}	最小值	最大值	平均值
Ba	100	0.0730	0.3430	0.7900	1.0300	0.0300	1.1100	0.4550
V	55	0.0020	0.0045	0.0068	0.0138	0.0440	0.0145	0.0052
Ca	100	12.9000	70.9000	94.2000	137.2000	5.4100	191.0000	59.8000
Cd	57	0.0015	0.0095	0.0139	0.0163	0.0030	0.0168	0.0085
Co	94	0.0030	0.0043	0.0066	0.0082	0.0020	0.0089	0.0047
K	100	1344.0000	1547.0000	1985.0000	2972.0000	982.0000	4436.0000	1764.0000
Al	100	1.0000	2.1300	3.2700	7.2400	0.0820	9.1500	2.6300
Mg	100	144.0000	201.0000	318.0000	578.0000	40.7000	379.0000	240.0000
Mn	100	0.9690	3.8800	5.4200	9.9000	0.4160	12.8000	3.7200
Mo	100	0.2000	0.2270	0.2720	0.4700	0.1400	0.5450	0.2460
Na	67	0.2500	5.2300	6.7900	9.1100	0.5100	15.0000	4.0200
Ni	100	0.0593	0.2000	0.2380	0.2810	0.0108	0.2350	0.1610
Pb	61	0.0020	0.0104	0.0416	0.0956	0.0050	0.1520	0.0239
Sr	100	0.0677	0.2690	0.9900	1.2600	0.0381	0.5900	0.5250
Sb	33	0.0025	0.0025	0.0066	0.0270	0.0071	0.0820	0.0070
Fe	100	5.2200	10.3000	13.5000	22.5000	2.1100	24.8000	10.4000
Cu	100	0.4520	1.2300	1.3900	2.0300	0.2580	2.7200	1.0400
Se	67	0.0025	0.0161	0.0275	0.1120	0.0050	0.7690	0.0342
Sn	14	0.0025	0.0025	0.0025	0.5800	0.0081	0.9820	0.0466
Zn	75	0.1000	2.6600	5.1000	16.1000	1.3100	21.0000	4.0100
Cr	100	0.1640	0.3550	0.4230	0.4920	0.0820	0.5330	0.2990
As	59	0.0020	0.0072	0.0120	0.0260	0.0046	0.0296	0.0083
B	49	0.0250	0.0250	0.4270	1.6400	0.0550	2.1200	0.3130
Rb	51	0.0050	0.4010	1.0500	2.7600	0.4450	4.4300	0.6790

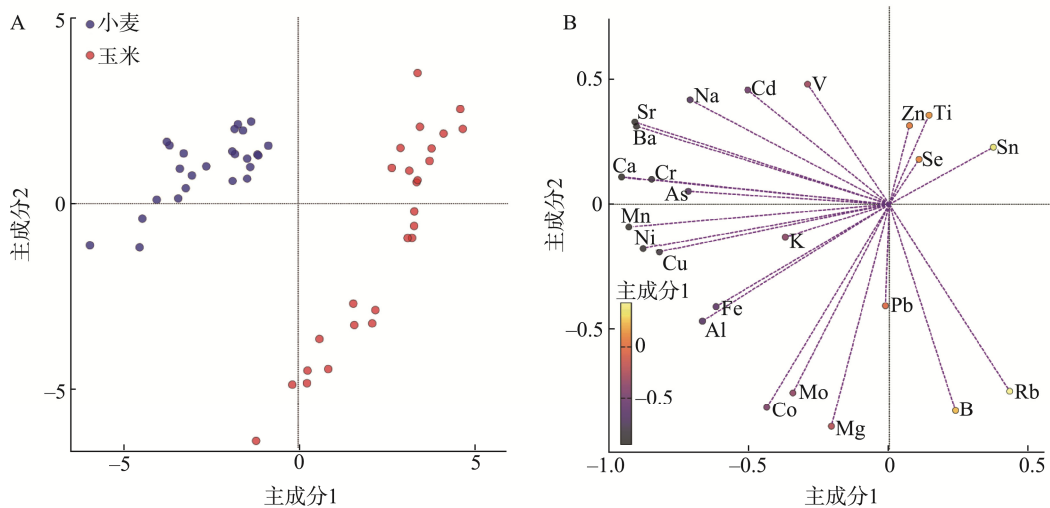
注: 最小值以高于检出限的最小值参与统计。



注: * $P \leq 0.05$; ** $P \leq 0.01$, 图 3 同。

图 1 谷物中金属元素相关性分析

Fig.1 Correlation analysis of metal elements in cereals



注: A. 谷物制品中 PCA 分析得分图; B. 谷物制品中 PCA 分析载荷图。

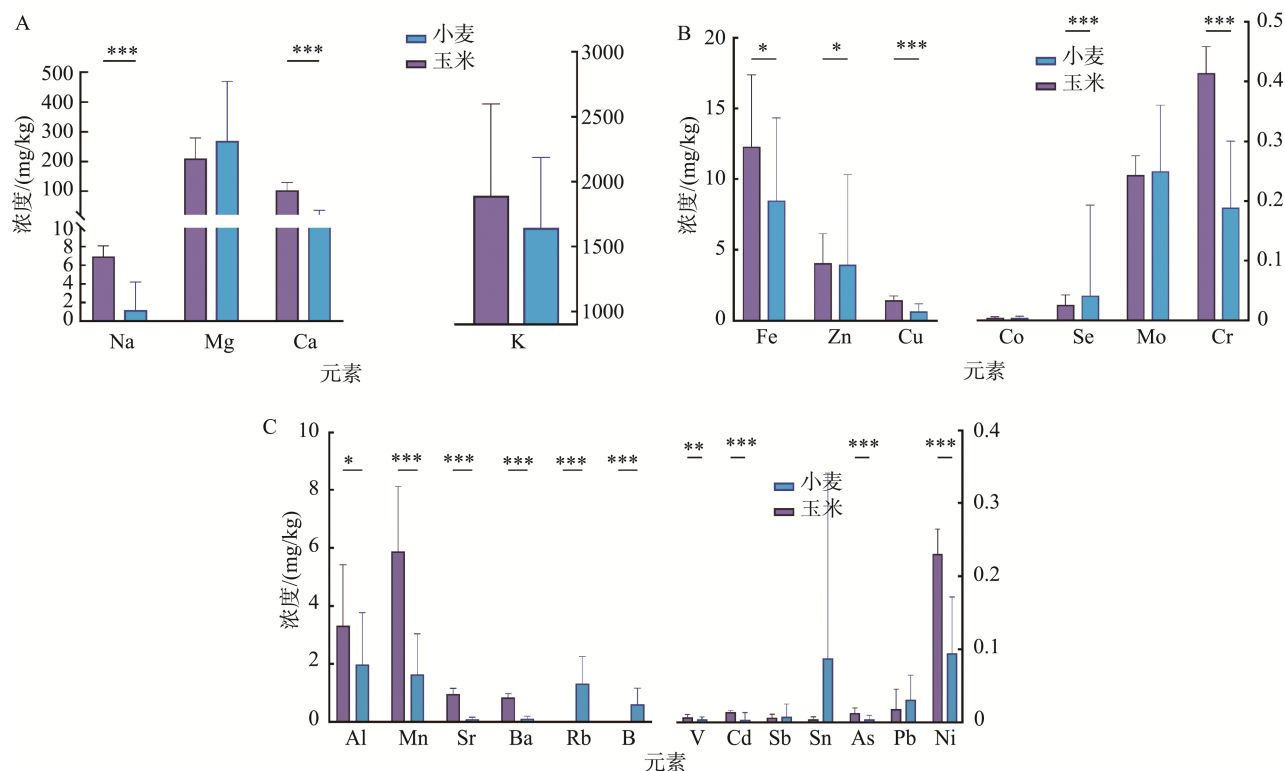
图 2 谷物制品中金属元素的 PCA

Fig.2 PCA of metal elements in cereals

2.4 玉米面与小麦粉中各元素组间含量统计分析

除 Hg 和 Li 元素两类谷物样品中均未检出外, 其他 24 种金属多元素结果采用 SPSS 22.0 软件进行玉米粉与小麦粉组间 Mann-Whitney U 非参数检验。分析结果显示, Na、Ca、Fe、Zn、

Cu、Se、Cr、Al、Mn、Sr、Ba、Rb、B、V、Cd、As 和 Ni 这 17 种元素在玉米与小麦含量均存在显著性差异($P < 0.05$), Mg、K、Co、Mo、Sb、Sn 和 Pb 这 7 种元素含量无显著差异。玉米与小麦中各元素含量与组间比对结果, 具体见图 3。



注: A. 必需常量元素; B. 必需微量元素; C. 其他元素; *** $P \leq 0.001$ 。

图 3 玉米与小麦中金属元素含量与组间对比分析

Fig.3 Comparative analysis of metal elements content in maize and wheat

2.5 谷物制品中重金属含量与污染物指数评价

由于 GB 2762—2022 中仅对 Hg、Pb、Cd、Cr、As 这 5 种元素进行了限值规定, 其余元素无限值要求, 因此仅讨论这 5 种重金属的超标情况。这 51 种谷物制品中, Hg、Pb、Cd、Cr、As 重金属含量均未超标, 合格率 100%。国标中各元素限量标准: Pb 0.2 mg/kg、Cd 0.1 mg/kg、Hg 0.02 mg/kg、As 0.5 mg/kg、Cr 1.0 mg/kg。将该限量标准作为内梅罗指数法中 S_i 值进行计算 P_i 和 P_c 。计算结果显示谷物中的这五种重金属的 P_i 和 P_c 污染指数都处于安全水平, 玉米和小麦中均为 Cr 的污染指数最高, As 的污染指数最低。具体见表 6。

表 6 谷物中 5 种重金属的污染指数
Table 6 Pollution index of 5 kinds of heavy metals in cereals

种类	P_i					污染程度	P_c	污染程度
	Pb	Cd	Cr	As	Hg			
玉米	0.088	0.037	0.189	0.008	0.075	安全	0.149	安全
小麦	0.187	0.135	0.414	0.025	0.075	安全	0.316	安全
合计	0.120	0.085	0.299	0.017	0.075	安全	0.228	安全

2.6 摄入量评估

根据谷物中所有元素的检出浓度的平均值, 计算人群的 EDI 水平, 已检出元素中 K 元素的 EDI 最高, 为 8.389 mg/(kg · d), Co 的 EDI 最低为 0.0224 $\mu\text{g}/(\text{kg} \cdot \text{d})$ 。具体见表 7。

表 7 居民的金属多元素 EDI 水平 [mg/(kg d)]

Table 7 EDI levels of metal multi-elements of residents [mg/(kg d)]

元素	EDI ($\times 10^{-3}$)	元素	EDI ($\times 10^{-3}$)
K	8389	B	1.49
Mg	1141	Cr	1.42
Ca	284	Mo	1.17
Fe	49.5	Ni	0.766
Na	19.1	Sn	0.222
Zn	19.1	Se	0.163
Mn	17.7	Pb	0.114
Al	12.5	Cd	0.0404
Cu	4.95	As	0.0394
Rb	3.23	Sb	0.0333
Sr	2.50	V	0.0249
Ba	2.16	Co	0.0224
Li*	0.0476	Hg*	0.00710

注: Li 和 Hg 按照检出限的 1/2 参与计算。EDI 值保留 3 位有效数字。

2.7 健康风险评估

根据 THQ 和 HI 公式计算金属的膳食摄入风险, 其中 Cu 的 THQ 最高为 0.9892×10^{-3} , 其次为 Cr, THQ 0.4740×10^{-3} , V 的 THQ 最低, 谷物中 HI 值为 2.675×10^{-3} , 所有指数均远小于 1, 说明谷物摄入对人群健康风险处于极安全水平。具体见表 8。

表 8 谷物中 19 种金属元素健康风险评估
Table 8 Health risk assessment of 19 kinds of metal elements in cereals

金属	THQ ($\times 10^{-3}$)	金属	THQ ($\times 10^{-3}$)
As	0.1313	Hg	0.0237
Al	0.0125	Mn	0.1264
B	0.0002	Mo	0.2340
Ba	0.0108	Ni	0.1418
Cd	0.0808	Pb	0.0812
Co	0.0007	Sb	0.0833
Cr	0.4740	Se	0.0325
Cu	0.9892	V	0.0000
Fe	0.1649	Zn	0.0636
Li	0.0238		

2.8 致癌风险评估

根据公式(6)计算 CR 值, 分别为: As 5.91×10^{-5} ; Pb 9.69×10^{-7} 。风险值从大到小依次为: As>Pb, 说明谷物中致癌风险主要由 As 贡献, As 的 CR 值表明谷物的饮食摄入量会导致一定的潜在癌症摄入风险, Pb 的 CR 值处于安全水平。

2.9 膳食营养素摄入评估

根据公式(7)计算出每日通过谷物摄入的膳食营养素的占 DRIs 的比例, 从每 100 g 营养成分中可以看出, Ca、K、Na、Mg 这 4 种必需常量元素中, 谷物中 K、Mg 含量较高, 每日摄入贡献率为 27.0% 和 26.2%; Ca 和 Na 的摄入贡献率较低, 不能作为这两种营养素的主要收入途径, 需要额外补充。必需的 7 种微量元素中, Cr 的每日摄入量最高, 为适宜摄入量的 3 倍左右, 不需要再额外补充; Mo 和 Cu 在平均需要量 EAR 中贡献率为 88.5% 和 53.0%, 谷物提供了一半以上营养素; Fe、Se、Mn、Zn 的营养素贡献率较低, 建议食用其他食品补充该类营养素。具体数值见表 9。

表 9 谷物中营养素膳食摄入量评估
Table 9 Assessment of dietary intake of nutrients in cereals

营养素	每 100 g 营养成分	EAR/%	RNI/%	UL/%	AI/%
Ca	5.98 mg	2.81	2.29	0.91	*
K	176 mg	*	*	*	27.0
Na	0.402 mg	*	*	*	0.08
Mg	24 mg	26.2	22.2	*	*
Fe	1.04 mg	男: 35.3/ 女: 21.2	男: 26.5/ 女: 15.9	7.57	*
Zn	0.401 mg	男: 11.8/ 女: 20.1	男: 9.81/ 女: 16.3	3.07	*
Se	3.42 μ g	26.2	16.7	2.61	*
Cu	0.104 mg	53.0	39.8	3.98	*
Mn	0.372 mg	*	*	10.3	男: 25.3/ 女: 31.0
Mo	24.6 μ g	88.5	75.2	8.36	*
Cr	29.9 μ g	*	*	*	305

注: *为目前无相关标准。

3 讨论与结论

本研究基于 GB 5009.268—2016 第一法 ICP-MS 法, 建立了谷物制品中多元素的检测方法, 26 种金属多元素标准曲线相关系数 r 在 0.9991~1.0000 之间, 检出限与国标一致, 加标回收率范围在 88.8%~103.5%, 有证标准物质测定值在有效区间, 方法线性良好, 回收率与准确率高, 适用于检测谷物中多元素。检测结果显示, 谷物中 26 种金属多元素除 Hg 和 Li 无检出外, 其他 24 种元素均有检出。12 种元素(Ba、Ca、K、Al、Mg、Mn、Mo、Ni、Sr、Fe、Cu、Cr)的检出率最高, 为 100%; 9 种元素(V、Cd、Co、Na、Pb、Se、Zn、As、Rb)的检出率较高, 大于 50%, 3 种元素(Sb、Sn 和 B)的检出率较低小于 50%。常量元素的含量高低顺序为: K>Mg>Ca>Na。该结果与文献[21-22]中谷物中常量元素高低水平基本一致, 常量元素中 Ca 的平均含量为 59.8 mg/kg, 与文献[23]中 Ca 平均含量(54.7~62.7 mg/kg)含量结果一致。结合营养素膳食评估结果, K 和 Mg 的营养素贡献率分别为 27.0% 和 26.2%, 说明谷物作为高钾低钠食品, 可作为需要控盐人群的良好食物来源。但谷物中 Ca 营养素贡献率较低(2.81%), 需要考虑额外补充钙质。5 种国标规定有明确限值的重金属均未超出国家谷物中标准限值, 合格率 100%, 检出率高低顺序为: Cr>Pb>As>Cd>Hg。该结果与北京市^[24]和山东省^[25]谷物制品重金属含量高低水平一致。这 5 种重金属的单因子污染指数和综合污染指数均为安全级别, 污染指数高低水平为 Cr>Pb>Cd>Hg>As, 该结果与河南省洛阳市^[26]谷物制品污染指数评估结果基本一致。说明邯郸地区谷物制品中污染物来源主要是 Cr 元素, Hg 和 As 元素污染物程度较低。值得注意的是, 在营养素膳食评价中, 谷物制品中 Cr 摄入量超出了适宜摄入量, 是推荐值的 3 倍, 需要引起额外关注。靶标指数 THQ 评估 19 种有经口摄入计量的元素, 结果显示所有元素的 THQ 值均处于安全水平, 综合危害指数 HI 值也远小于 1 (2.675×10^{-3}), 说明谷物摄入对人群没有健康风险。两致癌元素 As 和 Pb 的 CR 值评估结果, Pb 的 CR 值小于 1×10^{-6} , 处于安全水平, As 的 CR 值为 5.91×10^{-5} , 说明谷物的饮食摄入量的 As 对人群会产生潜在致癌风险, 但考虑到本研究测定的是总 As, 而无机 As 是导致癌症的风险的主要因素, 该评估结果可能会偏高。通过主成分分析和 Spearman 相关性分析, 玉米与小麦金属含量存在组间差异, 该结果与河南省^[26]、山东省^[27]、浙江省^[28]谷物制品分析结果一致。

邯郸地区谷物类样品的健康饮食风险评估整体处于较为安全水平, 但需重点关注 Cr 元素和 As 元素的摄入。玉米与小麦作为邯郸地区消耗量较大谷物类食品, 本研究在常见的重金属污染物研究的基础上, 丰富了常量元素和其他多元素摄入的评估结果, 为邯郸市居民谷物的健康风险评估和监管部门政策制定提供了数据支持。由于本研究

膳食评估主要基于点评估, 评估的结果与人群谷物的摄入量、人群的体重指数和检测样品中该元素含量有着密切的关系^[29], 本研究谷物摄入量 and 人群体重均采用人群平均数据, 评估结果可能与实际饮食摄入现状有一定的偏差^[30]。其次, 本研究没有通过确定暴露的生物指标来评估食物摄入后微量元素的吸收程度, 有研究表明^[31], 通过饮食摄入的多元素不会被人体全部吸收, 特别是在存在吸收不良疾病的情况下, 这些可能也会使得实际摄入量低于评估值; 最后由于某些元素不同价态毒性不同^[3], 如无机砷和有机砷、六价铬和三价铬、有机汞和无机汞等, 由于研究条件的限制, 检测的是金属元素的总价态, 评估时采用比较严格的风险评估模式(即全部按照有害价态评估), 可能会使得整体评估结果高于实际风险值。在后续的研究中, 建议持续关注不同地区、年龄和性别人群中的谷物摄入量、不同年份和多产地谷物的多元素含量, 同时考虑不同元素的吸收摄入量、不同元素价态的分型检测, 构建本地区谷物样品的风险数据库, 得到更精确的金属多元素评估结果。

参考文献

- [1] 胡欣. 中国家庭食物消费模式及其可持续性研究[D]. 南昌: 南昌大学, 2020.
HU X. Research on food consumption patterns and sustainability in Chinese households [D]. Nanchang: Nanchang University, 2020.
- [2] 刘芬, 周仕慧. 全谷物食品的营养与健康研究[J]. 食品安全导刊, 2023(2): 121–124.
LIU F, ZHOU SH. Study on nutrition and health of whole grain food [J]. China Food Safety Magazine, 2023(2): 121–124.
- [3] 中国营养学会. 中国居民膳食营养素参考摄入量(2023 版)[M]. 北京: 人民卫生出版社, 2023.
Chinese Nutrition Society. Dietary reference intakes for China (2023 edition) [M]. Beijing: People's Medical Publishing House, 2023.
- [4] BHATTACHARYA S. The role of probiotics in the amelioration of cadmium toxicity [J]. Biological Trace Element Research, 2020, 197(2): 440–444.
- [5] AHMAD W, ALHARTHY RD, ZUBAIR M, *et al.* Toxic and heavy metals contamination assessment in soil and water to evaluate human health risk [J]. Scientific Reports, 2021, 11(1): 17006.
- [6] 陈元元, 庄美慧, 姜健, 等. 2023 年安徽省小麦铅、镉、砷、铬污染分析及暴露健康风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2025, 16(6): 83–90.
CHEN YY, ZHUANG MH, JIANG J, *et al.* Analysis of lead, cadmium, arsenic and chromium pollution and health risk assessment of *Triticum aestivum* L. exposure in Anhui Province in 2023 [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2025, 16(6): 83–90.
- [7] 罗金. 焦作市部分市售食品重金属含量及其健康风险评估[D]. 焦作: 河南理工大学, 2022.
LUO J. Heavy metal content and health risk assessment of some commercially available foods in Jiaozuo City [D]. Jiaozuo: Henan Polytechnic University, 2022.
- [8] 王一鸣, 刘丽萍, 张妮娜, 等. 华北平原某地区农产品重金属含量及膳食摄入风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2025, 16(6): 66–75.
WANG YM, LIU LP, ZHANG NN, *et al.* Risk assessment of heavy metal content and dietary intake of agricultural products in a region of the North China Plain [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2025, 16(6): 66–75.
- [9] 林杰, 郭昱娇, 郭俊明. 不同色泽大米中 5 种金属元素检测及膳食风险分析[J]. 食品安全质量检测学报, 2024, 15(21): 287–293.
LIN J, GUO YJ, GUO JM. Detection and dietary risk assessment of 5 kinds of metallic elements in different color rice [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2024, 15(21): 287–293.
- [10] MONICA N, GUNNAR FN. Trace element research-historical and future aspects [J]. Journal of Trace Elements in Medicine and Biology, 2016, 38: 46–52.
- [11] 董竞. 原子吸收光谱法在食品重金属检测中的应用[J]. 中国食品工业, 2024(21): 87–89.
DONG J. The application of atomic absorption spectrometry in the detection of heavy metals in food [J]. China Food Industry, 2024(21): 87–89.
- [12] CHRIS D, TREY V, DEREK B, *et al.* How ICP-OES changed the face of trace element analysis: Review of the global application landscape [J]. Science of the Total Environment, 2023(905): 167242.
- [13] VAN-ACKER T, THEINER S, BOLEA-FERNANDEZ E, *et al.* Inductively coupled plasma mass spectrometry [J]. Nature Reviews Methods Primers, 2023, 3(1): 52.
- [14] 吴梅, 陈祝军, 陈蓉, 等. 茶叶、袋装茶以及茶粉中 15 种金属及类金属含量及健康风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2024, 15(16): 98–106.
WU M, CHEN ZJ, CHEN R, *et al.* Content of 15 kinds of metal and metalloid in tea, tea bag and tea powder and their health risk assessment [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2024, 15(16): 98–106.
- [15] FILIPPINI T, TANCREDI S, MALAGOLI C, *et al.* Dietary estimated intake of trace elements: Risk assessment in an Italian population [J]. Exposure and Health, 2020, 12(4): 641–655.
- [16] FANG Y, LIAN Y, LIU M, *et al.* Exposure and risk assessment of heavy metals via food consumption from handan city, north China [J]. Journal of Food Composition and Analysis, 2025, 140: 107287.
- [17] 段夏菲, 潘翊, 凌东辉, 等. 2018 年广州市米制品中膳食营养素摄入评价及重金属膳食暴露评估[J]. 中国卫生检验杂志, 2020, 30(11): 1397–1400, 1403.
DUAN XF, PAN Y, LING DH, *et al.* Evaluation of dietary nutrients intake and heavy metal exposure in rice products in Guangzhou in 2018 [J]. Chinese Journal of Health Laboratory Technology, 2020, 30(11): 1397–1400, 1403.
- [18] 李海燕, 尹盼盼, 彭腾腾, 等. 甘草中 20 种无机元素的测定及对有害元素的健康风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2024, 15(8): 281–291.
LI HY, YIN PP, PENG TT, *et al.* Determination of 20 kinds of inorganic elements in *Glycyrrhizae radix et rhizoma* and their health risk assessment [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2024, 15(8): 281–291.
- [19] 王海鹤, 孙媛媛, 张帅, 等. 贵阳市集中式饮用水源地重金属污染特征及健康风险评估[J]. 生态环境学报, 2022, 31(10): 2039–2047.
WANG HH, SUN YY, ZHANG S, *et al.* Pollution characteristics and

- health risk assessment of heavy metals in drinking water source of Guiyang [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2022, 31(10): 2039–2047.
- [20] LAWRIE C, ONG A, HERNANDEZ V, *et al.* Incidence and risk factors for postoperative urinary retention in total hip arthroplasty performed under spinal anesthesia [J]. *The Journal of Arthroplasty*, 2017, 32(12): 3748–3751.
- [21] 狄娜娅, 祝翔, 赵俊伟, 等. 微波消解-电感耦合等离子体质谱法测定小麦粉中 26 种元素[J]. *安徽预防医学杂志*, 2023, 29(3): 254–258.
DI NY, ZHU X, ZHAO J, *et al.* Determination of 26 elements in wheat flour by microwave digestion-inductively coupled plasma mass spectrometry [J]. *Anhui Journal of Preventive Medicine*, 2023, 29(3): 254–258.
- [22] BOY F, DARIO F. Mineral composition of triticale grains as related to grain yield and grain protein [J]. *Crop Science*, 1995, 35(5): 1426–1431.
- [23] 陈志坚. 竹米与主要谷物化学成分和营养价值的比较评估[D]. 杭州: 浙江农林大学, 2024.
CHEN ZJ. A comparative evaluation of chemical composition and nutritional value of bamboo rice and major cereals [J]. *Hangzhou: Zhejiang A&F University*, 2024.
- [24] 许嘉, 巴蕾, 林楠, 等. 北京市市售 230 件谷物制品重金属检测分析[J]. *中国食物与营养*, 2019, 25(2): 26–28.
JIN Q, BA L, LIN N, *et al.* The content of Pb, Cd, Cr in organic fertilizer prepared from chinese medicine residue [J]. *Food and Nutrition in China*, 2019, 25(2): 26–28.
- [25] 姜艳慧, 董炳刚, 张羽婷, 等. 山东省 16 地市市售玉米粉中多元素含量调查及健康风险预警分析[J]. *预防医学论坛*, 2023, 29(12): 940–943, 954.
JIANG YH, DONG BG, ZHANG YT, *et al.* Analysis on investigation and health risk warning of multi-element content in corn meal in 16 cities of Shandong Province [J]. *Preventive Medicine Tribune*, 2023, 29(12): 940–943, 954.
- [26] 常晓歌, 韩琳, 符晓蒙, 等. 河南省洛阳市市售谷物中铅镉汞砷的污染状况及暴露风险评估[J]. *现代疾病预防控制*, 2024, 35(11): 838–842.
CHANG XG, HAN L, FU XM, *et al.* Contamination status and exposure risk assessment of lead, cadmium, mercury and arsenic in cereal grains sold in Luoyang, Henan [J]. *Modern Disease Control and Prevention*, 2024, 35(11): 838–842.
- [27] 董峰光, 王朝霞, 宫春波, 等. 烟台市市售谷物及其制品重金属污染状况及暴露风险评估[J]. *职业与健康*, 2017, 33(6): 756–759.
DONG FG, WANG ZX, GONG CB, *et al.* Pollution and risk assessment of exposure to heavy metals in cereals and cereal products in Yantai market [J]. *Occupation and Health*, 2017, 33(6): 756–759.
- [28] 张荷香, 陈江, 章荣华, 等. 2009—2013 年浙江省谷物及制品中铅污染状况分析[J]. *卫生研究*, 2016, 45(4): 668–669, 676.
ZHANG HX, CHEN J, ZHANG RH, *et al.* Analysis of lead contamination in grains and their products in Zhejiang Province from 2009 to 2013 [J]. *Journal of Hygiene Research*, 2016, 45(4): 668–669, 676.
- [29] WANG Y, CAO D, QIN J, *et al.* Deterministic and probabilistic health risk assessment of toxic metals in the daily diets of residents in industrial regions of northern ningxia, China [J]. *Biological Trace Element Research*, 2023, 201(9): 4334–4348.
- [30] KIM C, LEE J, KWON S, *et al.* Total diet study: For a closer-to-real estimate of dietary exposure to chemical substances [J]. *Toxicological Research*, 2015, 31(3): 227–240.
- [31] WANG Z, BAO J, WANG T, *et al.* Hazardous heavy metals accumulation and health risk assessment of different vegetable species in contaminated soils from a typical mining city, central China [J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2021, 18(5): 2617.

(责任编辑: 蔡世佳 韩晓红)