DOI: 10.19812/j.cnki.jfsq11-5956/ts.20260316001
引用格式: 杨挺, 张今君, 罗振玲, 等. 养殖青蟹氨基脲残留内源性特征研究及食用安全风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2026, 17(16): 190–197.
Yang Ting, Zhang Jinjun, Luo Zhenling, et al. Study on the endogenous characteristics of semicarbazide residues in farmed *Scylla paramamosain* and risk assessment of consumption safety [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2026, 17(16): 190–197. (in Chinese with English abstract).

养殖青蟹氨基脲残留内源性特征研究及食用安全风险评估

杨 挺, 张今君, 罗振玲, 林刚健, 夏慧丽*
(台州市食品药品检验研究院, 台州市特色农产品质量安全与品质提升重点实验室, 台州 318000)

摘 要: 目的 探究养殖青蟹中氨基脲(semicarbazide, SEM)残留的内源性特征及食用安全风险。**方法** 本研究对浙江三门湾和乐清湾沿岸宁海、三门、温岭、玉环、乐清五县(市)养殖塘采集 239 批次青蟹样本, 同时采集水样和泥样各 119 批次, 采用液相色谱-串联质谱法检测 SEM 残留, 共获得 478 个有效数据。**结果** 所有水样和泥样均未检出 SEM, 而青蟹样本检出率达 92.1%, 证实检出 SEM 主要源于内源性本底。检出值呈现典型正偏态分布, 75.9%的样本集中在 0.1~0.4 μg/kg 的优势浓度区间, 超过 1.0 μg/kg 的样本仅占 0.45%。组织分布显示, 蟹膏中 SEM 含量普遍高于蟹肉, 但 51.2%的样本膏与肉中 SEM 检出值比值集中于 1~2 之间, 呈现结合态残留的均匀分布特征, 未出现极端富集现象。地域间差异无统计学意义(P>0.05), 三门湾与乐清湾同属内源性背景区。性别差异显著(P<0.05), 主要受母蟹繁殖周期中脂质向卵巢转运过程调控; 时间维度上, SEM 含量随生殖节律呈现规律性波动, 母蟹膏在 9 月中旬达峰值 0.40 μg/kg, 与卵巢成熟期高度重合。食用安全风险评估表明, 单只青蟹 SEM 平均摄入量约 50 ng, 仅相当于实验动物毒性反应剂量的 1/300000, 食用安全风险极低。**结论** 三门湾与乐清湾养殖青蟹中 SEM 残留本质上是受生殖周期调控的内源性本底现象, 不存在系统性安全风险, 消费者可放心食用。

关键词: 青蟹; 氨基脲; 内源性; 组织分布; 生殖周期; 风险评估
中图分类号: TS201.6 **文献识别码:** A **文章编号:** 2095–0381(2026)16–0190–08

Study on the endogenous characteristics of semicarbazide residues in farmed *Scylla paramamosain* and risk assessment of consumption safety

YANG Ting, ZHANG Jin-Jun, LUO Zhen-Ling, LIN Gang-Jian, XIA Hui-Li*
(*Taizhou Institute for Food and Drug Control*, *Taizhou Key Laboratory for Safety and Quality Enhancement of Characteristic Agricultural Products*, *Taizhou* 318000, *China*)

ABSTRACT: Objective To investigate the endogenous characteristics and consumption safety risk of semicarbazide

收稿日期: 2026-03-16
基金项目: 浙江省市场监督管理局科技计划项目青年项目(QN2025058)
第一作者: 杨挺(1992—), 男, 工程师, 主要研究方向为食品质量安全检测和分析。E-mail: 960144521@qq.com
***通信作者:** 夏慧丽(1978—), 女, 博士, 高级工程师, 主要研究方向为食品质量安全检测和分析。E-mail: 64463403@qq.com

(SEM) residues in farmed *Scylla paramamosain*. **Methods**　A total of 239 mud crab samples were collected from aquaculture ponds along the coasts of Sanmen Bay and Yueqing Bay, covering 5 counties (cities): Ninghai, Sanmen, Wenling, Yuhuan and Yueqing. In addition, 119 water samples and 119 sediment samples were simultaneously collected. SEM residues were detected using high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry, yielding 478 valid data points in total. **Results**　No SEM was detected in any water or sediment samples, while the detection rate in *Scylla paramamosain* reached 92.1%, confirming that the detected SEM was confirmed to be mainly derived from the endogenous background. The detected values exhibited a typical positively skewed distribution, with 75.9% of samples concentrated in the dominant concentration range of 0.1–0.4 μg/kg, and only 0.45% of samples exceeded 1.0 μg/kg. Tissue distribution analysis revealed that SEM concentrations in the hepatopancreas were generally higher than those in muscle, but 51.2% of samples showed hepatopancreas/muscle ratios between 1 and 2, indicating a uniform distribution pattern characteristic of bound residues without extreme enrichment. No statistically significant differences were observed among regions (P>0.05), with both Sanmen Bay and Yueqing Bay belonging to endogenous background areas. Significant gender differences (P<0.05) were primarily regulated by the dynamic process of lipid transport to ovaries during the female reproductive cycle. Temporally, SEM concentrations exhibited regular fluctuations with reproductive rhythms, peaking in female hepatopancreas at 0.40 μg/kg in mid-September, coinciding with ovarian maturation. Food safety risk assessment indicated that the average SEM intake per *Scylla paramamosain* was approximately 50 ng, equivalent to only 1/300000 of the toxic reaction dose in experimental animals, indicating extremely low food safety risk. **Conclusion**　SEM residues in farmed *Scylla paramamosain* from Sanmen Bay and Yueqing Bay represent an endogenous background phenomenon regulated by reproductive cycles, posing no systematic safety risk, and consumers can safely consume these products.

KEY WORDS: *Scylla paramamosain*; semicarbazide; endogenous; tissue distribution; reproductive cycle; risk assessment

0　引　言

呋喃西林是一种广谱抗菌药, 曾被广泛应用于水产养殖领域, 其代谢物氨基脲(semicarbazide, SEM)在动物体内能与蛋白质结合形成稳定的残留物, 且具有“三致”毒性(致癌、致畸、致突变)[1–2], 因此被国家列为水产养殖禁用药物。SEM 作为呋喃西林的标志性代谢物, 长期以来被用作判断水产品中是否存在违禁用药的关键指标。然而, 近年来越来越多的研究表明[3], 在未使用呋喃西林药物的情况下, 虾[4]、蟹[5]等甲壳类动物体内仍普遍存在 SEM 检出现象[6], 提示该类产品中可能存在内源性 SEM[7-8]。基于此, 自 2022 年起, 国家市场监督管理总局发布的《国家食品安全监督抽检实施细则》已不再将呋喃西林代谢物 SEM 作为虾蟹类产品的日常监督抽检项目。但这一政策调整并未完全打消消费者对青蟹质量安全的疑虑, 部分消费者仍将“检出 SEM”等同于“违规用药有毒有害”, 对产品安全性产生误解。

青蟹标准名为拟穴青蟹(*Scylla paramamosain*), 是浙江省重点养殖水产品之一, 三门湾与乐清湾是其核心产区。其中, 三门县作为“中国青蟹之乡”, 2024 年养殖面积达 53.33 km^2, 产量约 1.56 万吨, 全产业链年产值突破 8 亿元[9]; 乐清蝻蜂(青蟹)于 2025 年入选全国名特优新农产品名录, 养殖面积超 1.5 万亩, 产值达 2.16 亿元。加上宁海、温岭、玉环等湾区县市, 整个三门湾与乐清湾青蟹年产量已超 1.7 万吨, 在全省乃至全国水产品市场中占据重要地位。目前, 学术界对虾类中内源性 SEM 的形成机制及残留水平已有较多研究, 但对蟹类尤其是青蟹的关注极为有限[10]。通过检索中国知网、ScienceDirect 等国内外主要文献数据库发现, 目前针对养殖青蟹体内 SEM 残留水平及其在不同性别、不同组织(肉与膏)、不同采样时间及不同产地间残留特征规律的研究报道极为有限。现有研究大多未同步检测养殖水体和底泥中的 SEM 以排除外源性污染, 亦未结合生殖周期开展多时间点动态追踪, 因而难以全面揭示其内源性本底规律。

为此, 本研究以三门湾与乐清湾沿岸五县(市)为采样区域, 大规模采集不同生长阶段养殖青蟹 239 批次并同步检测水样和泥样, 从组织分布(肉与膏)、性别差异、地域差异及时间变化(结合生殖周期)等多个维度系统揭示了青蟹体内 SEM 的残留水平与分布特征。通过同步排除养殖环节外源污染并追踪生殖节律, 从数据层面证实青蟹中 SEM 残留的内源性本质且受蟹繁殖周期调控, 峰值与卵巢成熟期高度重合, 研究结论支持养殖青蟹中的 SEM 存在内源性本底现象, 不存在系统性安全风险, 为监管部门制定科

学合理的分类管理策略、保护青蟹产业品牌价值及保障消费者“舌尖上的安全”提供了直接的数据支撑。

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

青蟹、水和泥均取自三门湾和乐清湾沿岸各养殖塘，涵盖宁海县、三门县、温岭市、玉环市、乐清市，采样时间跨度从 6—10 月，共采集青蟹样品 239 批次，水和泥样品各 119 批次，冷藏至实验室后迅速冷冻。

SEM 标准品、同位素标记的 SEM-$^{13}C^{15}N_2$ 标准品(质量浓度为 100.1 mg/L±3.1 mg/L)(上海安谱云实验用品有限公司)；甲醇(色谱纯，美国默克公司)；盐酸(优级纯，国药集团化学试剂有限公司)；乙酸铵(色谱纯)、磷酸氢二钾、二甲基亚砜(分析纯)(上海阿拉丁生化科技股份有限公司)；2-硝基苯甲醛(色谱纯，德国 CNW 技术有限责任公司)；乙酸乙酯(色谱纯)、正己烷(色谱纯)(美国天地有限公司)。

1.2 仪器与设备

Qtrap5500 液相色谱-串联质谱仪[配有电喷雾离子源(electrospray ionization, ESI)和 MultiQuant3.0.2 数据处理系统，美国 AB SCIEX 公司]；BUCHI B-400 均质仪(瑞士 BUCHI 有限公司)；VORTEX 3 涡旋混匀器、KS4000ic 恒温振荡器(德国 IKA 公司)；LebTecH MV5 氮吹浓缩仪(北京莱伯泰科仪器股份有限公司)；Allegra X-30 离心机(美国 BECKMAN 公司)；PR1602ZH/E 电子天平[精度 0.01 g，奥豪斯国际贸易(上海)有限公司]；Waters ACQUITY UPLC BEH C_{18} 色谱柱(100 mm×2.1 mm, 1.7 μm)(爱尔兰 Waters 分公司)；亲水 PTFE 针式滤器(13 mm/0.22 μm)(上海安谱实验科技股份有限公司)。

1.3 方 法

1.3.1 仪器分析条件

色谱柱：Waters ACQUITY UPLC BEH C_{18} 色谱柱(100 mm×2.1 mm, 1.7μm)；柱温：30 ℃；流速：0.30 mL/min；进样量：5.0 μL；流动相水相 A 为 5 mmol/L 乙酸铵水溶液，流动相有机相 B 为乙腈；梯度洗脱程序：0~0.50 min, 10% B；0.50~4.00 min, 10%~95% B；4.00~5.50 min, 95% B；5.50~6.00 min, 95%~10% B；6.00~7.00 min, 10% B。

质谱条件：离子源为电喷雾离子源，电喷雾电压 5000 V，离子源温度 500 ℃，气帘气 35 psi，喷雾气 GS1 50 psi，辅助气 GS2 50 psi。扫描模式：多反应监测，SEM 衍生物 *m/z* 209.2>166.2(去簇电压 80 V，碰撞能量 14 V)，*m/z* 209.2>192.1(去簇电压 80 V，碰撞能量 16 V)；同位素标记的 SEM 衍生物 *m/z* 212.1>168.0(去簇电压 80 V，碰撞能量 14 V)。

1.3.2 样品制备

将采集到的青蟹按性别分类编号，去除壳(背甲、腹甲、脐、附肢)、鳃及内脏(不含性腺和肝胰脏)，用取蟹专用工具将足部和腹部的肉取下混匀后装罐，将性腺和肝胰脏(简称“膏”)取下混匀后另外装罐，相应编号后于–18 ℃保存。

1.3.3 样品前处理

(1)青蟹肉和水样

称取 2.0 g(精确到 0.01 g)于 50 mL 棕色离心管中，加入 SEM 内标工作溶液 5 ng，涡旋混合后再加入 5 mL 0.5 mol/L 盐酸溶液和 0.15 mL 0.05 mol/L 2-硝基苯甲醛溶液，涡旋振荡 1 min 后，置于恒温振荡器中 37 ℃避光振荡 16 h。

(2)养殖塘淤泥样品

先用少量一级水清洗去除大颗粒，搅拌均匀后在 50 ℃恒温箱里干燥，取干燥后的样品 4.0 g(精确到 0.01 g)，加入 40 mL 一级水，振荡 15 min，超声 30 min, 8000 r/min 离心 5 min，称取上清液 2.0 g(精确到 0.01 g)于 50 mL 棕色离心管中，加入 SEM 内标工作溶液 5 ng，涡旋混合后再加入 5 mL 0.5 mol/L 盐酸溶液和 0.15 mL 0.05 mol/L 2-硝基苯甲醛溶液，涡旋振荡 1 min 后，置于恒温振荡器中 37 ℃避光振荡 16 h。

(3)衍生后处理

取出上述离心管冷却至室温，用磷酸氢二钾溶液调节 pH 至 7.0~7.5，再加入 8 mL 乙酸乙酯，涡旋振荡 5 min，超声 6 min, 6000 r/min 离心 5 min，取上层清液转移至 15 mL 棕色离心管中于 40 ℃下氮气吹干；准确加入 1.0 mL 10%甲醇水溶液涡旋振荡溶解残留物，过 0.22 μm 滤膜，待测。

(4)青蟹膏样品

称取 2.0 g (精确到 0.01 g)于 50 mL 棕色离心管中，加入 SEM 内标工作溶液 5 ng，涡旋混合后再加入 5 mL 0.5 mol/L 盐酸溶液和 0.15 mL 0.05 mol/L 2-硝基苯甲醛溶液，涡旋振荡 1 min 后，置于恒温振荡器中 37 ℃避光振荡 16 h。取出离心管冷却至室温，用磷酸氢二钾溶液调节 pH 至 7.0~7.5，加入 8 mL 正己烷，涡旋振荡 5 min，超声 6 min, 8000 r/min 离心 5 min，去掉上层有机相，再加入 8 mL 乙酸乙酯，涡旋振荡 5 min，超声 6 min, 8000 r/min 离心 5 min，取上层清液转移至 15 mL 棕色离心管中于 40 ℃下氮气吹干。准确加入 1.0 mL 10%甲醇水溶液涡旋振荡溶解残留物，过 0.22 μm 滤膜，待测。

1.3.4 标准工作曲线制作

准确移取适量 SEM 标准中间液于 50 mL 棕色离心管中，加入 SEM 内标工作溶液 5 ng，除不加样品外，其余按照青蟹肉前处理步骤衍生提取净化，配制成质量浓度分别为 0.2、0.5、1.0、2.0、5.0、10.0、20.0 ng/mL 的标准系列溶液，其中内标质量浓度为 5.0 ng/mL。本研究参照标准农业部 783 号公告-1-2006、GB 31656.13—2021《食品安全国家标准 水产品中硝基呋喃类代谢物残留量的测定》等，针对不同样品基质采用了不同的处理方式，样品前处理原理与标准一致，方法检出限结合仪器实际为 0.1 μg/kg[11]。

每次实验均做阴性样品质控, 要求批内相对标准偏差小于等于 10%, 质控回收率在 60%~120%。

1.4　数据处理

实验数据分析采用 QTRAP5500 超高效液相色谱-串联质谱仪自带软件 MultiQuant 3.0.2, 所有样品均采用双平行同步进行, 检测结果以平均值计, 有效数字保留小数点后两位。采用 SPSS 26.0 进行统计学分析, 组间比较采用单因素方差分析和 *t* 检验, $P<0.05$ 为差异显著。

2　结果与分析

2.1　青蟹中 SEM 内源性残留总体水平

此次青蟹取样涵盖三门湾和乐清湾沿岸宁波市宁海县、台州市三门县、台州市温岭市、台州市玉环市、温州市乐清市等三市五县(市)各养殖合作社内各户养殖塘。共取样 239 批次, 其中三门县 117 批次, 玉环市 50 批次, 乐清市 50 批次, 宁海县 17 批次, 温岭市 5 批次, 获得有效数据 478 个。

通过对 478 个有效数据进行分析发现, 未检出 38 频次, 未检出率为 7.9%, 检出样本 440 频次, 检出率 92.1%。所有养殖塘水和泥样中均未检出 SEM, 强烈提示养殖环节青蟹中检出的 SEM 主要源于内源性本底, 而非当前养殖环境中的普遍性外源污染。具体检出频次与检出值范围关系见图 1。

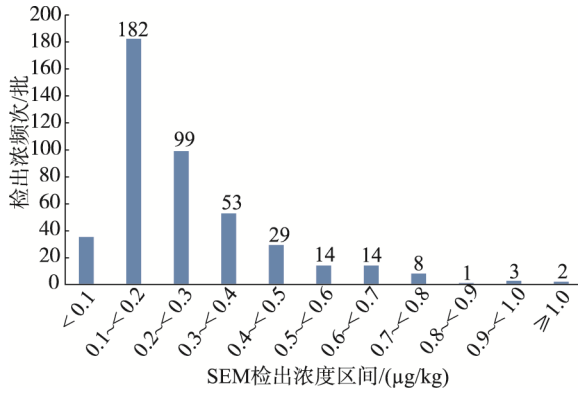


图 1　青蟹中 SEM 检出值的浓度区间分布

Fig.1　Distribution of concentration intervals of SEM residues detected in *Scylla paramamosain*

从检出频次的分布来看, 青蟹样本中 SEM 检出值的频次分布呈现典型的正偏态特征。具体而言, 检出值在 0.1~<0.2 μg/kg 区间出现峰值(182 次), 0.2~<0.3 μg/kg 区间 99 次, 0.3~<0.4 μg/kg 区间 53 次, 此后随浓度升高频次急剧下降, 形成快速衰减的长尾(0.5 μg/kg 以上各区间累计仅 42 次)。0.1~0.4 μg/kg 优势浓度区间集中了 75.9%的检出样本, 反映了青蟹体内 SEM 的内源本底水平范围。

根据中华人民共和国农业农村部公告第 250 号《食品动物中禁止使用的药品及其化合物清单》中规定呋喃西林禁止在食品动物中使用, 作为呋喃西林代谢物的判定指标 SEM 不得检出, 而考虑到甲壳类水产品中存在内源性 SEM 污染的因素, 从 2022 年开始国家市场监督管理总局公布的《国家食品安全监督抽检实施细则》去掉了虾蟹中呋喃西林项目的日常监督抽检任务, 2021 年新增加的 GB 31656.13—2021 相较 2006 年出台的农业部 781 号公告和农业部 783 号公告标准规定的定量限从 0.5 μg/kg 变为了 1.0 μg/kg, 但是其适用范围却不包括虾蟹中呋喃西林代谢物项目, 目前国内外未能查到有明确规定甲壳类水产品中呋喃西林代谢物最大允许检出值, 但张泓麟等[12]在研究中提到《关于开展 2016 年国家产地水产品质量安全监督抽查工作的通知》曾将 SEM 的残留限量值定为 1.0 μg/kg, 高芳芳等[13]在研究中也提到农业农村部在下达监督抽查任务时, 对动物性食品中的呋喃西林代谢物设定的最大检出值为 1.0 μg/kg, Čavlović 等[14]在研究中也提到了相应观点。这些都表明在当前甲壳类水产品内源性水平尚未有定论的情况下, 1.0 μg/kg 是实际操作层面认可的甲壳类水产品允许检出阈值, 因为虽然市场监督管理总局公布的细则中对虾蟹中呋喃西林代谢物项目不做强制性检测要求, 但是农业部门和港航与渔业管理部门制定的年度抽检任务中仍然要求检测虾蟹中的呋喃西林代谢物项目。1.0 μg/kg 的允许检出阈值也符合青蟹中检出情况, 大于 1.0 μg/kg 的只有 2 频次, 占比 0.5%。同时有检出的 440 频次青蟹的平均含量为 0.26 μg/kg, 这表明在标准操作层面青蟹中的 SEM 残留量在允许范围内。

青蟹的可食部分比例因性别而异, 雌蟹净肉率约为 0.72, 雄蟹约为 0.64[15–16]。按单只青蟹平均体重 300 g[17]计, 其可食组织约 192 g, 基于本研究中 SEM 平均残留水平计算, 单只青蟹的摄入量约为 50 ng, 假设一名幼儿体重为 20 kg, 则每日食用一只青蟹所摄入的 SEM 仅为 2.5 ng/(kg•d)。这一暴露水平远低于已有动物实验中观察到毒性效应的剂量[0.75~40 mg/(kg•d)][18–20], 相当于实验动物毒性反应剂量的 1/300000。同时, 与同类甲壳类水产品相比, 青蟹中 SEM 残留量显著低于罗氏沼虾及养殖淡水虾已报道的残留浓度范围(1.88~16.94 μg/kg)[21–22]。综合以上分析, 青蟹中 SEM 残留水平远未达到已知毒性阈值, 常规食用条件下不会对消费者健康构成实质性安全风险。

这一分布特征具有重要的风险管理启示。由于绝大多数样本集中在 0.4 μg/kg 以下的低浓度区间, 且超过 0.5 μg/kg 的样本极为稀少, 提示监管中应采取分类管理策略, 对普遍存在的低浓度区间, 可考虑纳入常态化监测, 而对尾部高值样本, 则应追溯其来源(如养殖场、捕捞水域等), 排查是否存在违规用药或点源污染, 推动恢复青蟹中呋喃西林代谢物项目的常态化检测。

2.2 同一批次青蟹不同组织 SEM 残留水平

对 239 批次青蟹按组织分别分析发现，蟹肉中未检出 24 批次，其中 14 批次对应的蟹膏也未检出，但 10 批次蟹膏有检出(平均值 0.124 μg/kg，最大值 0.201 μg/kg)。在检出的 215 批次中，蟹膏中检出值高于蟹肉中的有 200 批次(93.0%)，蟹肉高于蟹膏的仅 15 批次(7.0%)，按照蟹膏检出值与蟹肉检出值的比值再进行细分，具体情况见图 2。

通过图 2 可以发现青蟹蟹膏中 SEM 残留水平明显高于蟹肉中，这也与徐磊等[23]对日本沼虾中生殖腺 SEM 含量>肌肉的结论相符。SEM 作为呋喃西林的代谢标记物，其组织分布具有结合态残留特性，SEM 可与组织蛋白形成稳定的结合残留，不易被代谢清除，肝胰腺(蟹膏)因富含蛋白质和脂质，理论上应具有更高的结合残留能力，同时当暴露停止后或者内源生成后，肌肉组织中的游离 SEM 较快消除，而结合态的残留则在不同组织中维持相对稳定的比例，通过数据分析发现 51.2%的样本集中在膏/肉比值 1~2 之间，表明在大多数情况下，蟹膏中的 SEM 浓度仅略高于蟹肉(1~2 倍)。图 2 的分布特征表明 SEM 在蟹体内的分布并非典型的脂溶性污染物富集模式(通常脂溶性物质膏/肉比值可达 5~10 倍)更可能反映的是结合态残留的均匀分布特征，SEM 与组织蛋白结合后，在不同组织中的结合位点密度差异有限，导致最终残留浓度差异不大。低比值区(<1)占 7.0%，这一部分样本表现为蟹肉浓度高于蟹膏，可能是因为内源性产生的 SEM 尚未完成在组织间的再分布，也有可能是部分青蟹肝胰腺发育不良或脂质含量低，富集能力较弱或者是个别样本可能存在特殊的代谢特征。高比值区(≥4)仅占 3.7%，表明极端高比值样本极少，说明 SEM 在蟹膏中不会出现极端富集。这与研究熟知的镉、甲基汞等典型污染物不同——后者在肝胰腺中的富集系数常可达 10 倍以上[24-25]。这一差异的毒理学意义在于：SEM 的残留特征更接近均匀分布型污染物，而非器官趋向型污染物。因此对于那些特别喜好吃蟹尤其是吃蟹膏的消费者而言，可以不用担心污染物富集效应。

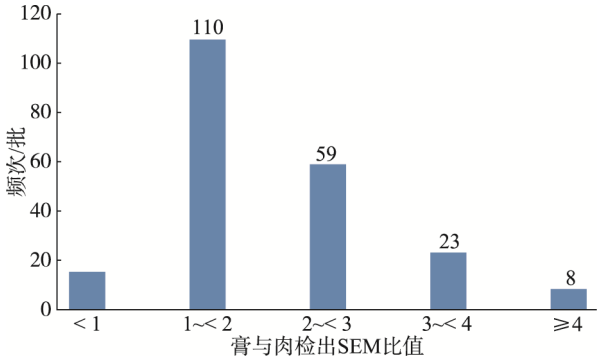


图 2 青蟹膏/肉 SEM 检出比值频次分布

Fig.2 Frequency distribution of SEM ratios in roe and muscle of *Scylla paramamosain*

2.3 不同地域青蟹中 SEM 残留水平

对 239 批次青蟹 478 频次有效数据按照地域进行分析，具体情况见表 1。通过表 1 可以发现整个三门湾和乐清湾从北到南涉及县级县市区分别为宁波市宁海县、台州市三门县、台州市温岭市、台州市玉环市、温州市乐清市。单因素方差分析表明，三门湾与乐清湾青蟹中 SEM 残留水平不存在统计学意义[$F(4473)=1.668$，$P=0.156>0.05$]的地域性差异。两地同属“高检出率、低残留浓度”的内源性污染背景区，0.23~0.29 μg/kg 的微小波动可能是检测方法不确定度、生物个体差异及采样随机误差等。乐清湾略高本质上是玉环市一个县域的高值和温岭市小样本高检出率共同造成的统计假象，而三门湾的“略低”则主要源于宁海县一个小样本低检出率的干扰。以三门县代表三门湾主体、以乐清市和玉环市代表乐清湾主体，两地残留水平高度趋同。

根据环境化学的空间分布理论，持续性污染物在相邻水域的浓度应呈现渐变趋势而非突变。三门湾与乐清湾通过沿海水域相连，不存在生物地理屏障。若两地青蟹 SEM 残留存在系统性差异，必然要求存在明确的污染源强度差异(如乐清湾有持续输入而三门湾无等)。三门湾和乐清湾水质情况不一，环境污染程度也不一，已有调查表明，三门湾面临的主要环境压力为水体富营养化及重金属蓄积问题，乐清湾则以总氮严重超标和微塑料污染为主要特征[26–29]。虽然污染源和强度存在差异，但是总体检出水平相差不大，进一步佐证了 SEM 残留主要是内源性因素而非外源性因素，且养殖环境对内源性影响不大。

表 1 不同地域青蟹中 SEM 检出情况表

Table 1 Detection table of SEM in *Scylla paramamosain* from different regions

序号	地域	频次	检出率/%	平均值/(μg/kg)	标准偏差/(μg/kg)
1	宁海县	34	76.47	0.24	0.17
2	三门县	234	90.60	0.26	0.19
3	温岭市	10	100.00	0.24	0.08
4	玉环市	100	100.00	0.29	0.16
5	乐清市	100	92.00	0.23	0.14

2.4 不同性别青蟹 SEM 残留水平

对 239 批次青蟹 478 频次有效数据按照地域、青蟹性别等进行分析，具体情况见表 2。通过表 2 可以发现并非所有地域内公母蟹中肌肉和膏体 SEM 含量均存在显著差异。具体而言：玉环市母蟹肌肉中 SEM 含量显著高于公蟹($P=0.046$)，而膏体差异不显著；乐清市公蟹膏体中 SEM 含量显著高于母蟹($P=0.035$)，而肌肉差异不显著；宁海县和三门县肌肉和膏体均无统计学显著差异($P>0.05$)。因此，性别对 SEM 残留的影响具有地域异质性，在部分地域的特定组织中观察到显著差异但方向不一致。

在玉环市, 母蟹膏的平均含量高达 0.40 μg/kg, 高于公蟹膏的 0.35 μg/kg, 同时母蟹肉 0.23 μg/kg 亦高于公蟹肉的 0.18 μg/kg, 呈现母蟹高于公蟹的特征。与之相反的是三门县和乐清市呈现出母蟹中肉和膏 SEM 含量均低于公蟹的特征, 三门县母蟹膏为 0.31 μg/kg, 略低于公蟹膏的 0.34 μg/kg, 母蟹肉 0.17 μg/kg 也低于公蟹肉的 0.19 μg/kg; 乐清市母蟹膏为 0.26 μg/kg, 低于公蟹膏的 0.35 μg/kg, 母蟹肉 0.14 μg/kg 亦低于公蟹肉的 0.19 μg/kg。而宁海县呈现的特征是母蟹膏(0.27 μg/kg)低于公蟹膏(0.31 μg/kg), 母蟹肉检出含量与公蟹肉持平(均为 0.17 μg/kg)。

上述差异可从生理学角度加以解释。膏体主要由性腺和肝胰腺组成, 是脂溶性物质的主要富集部位。母蟹在繁殖前期需要大量积累脂质以供卵黄发生[30], 此时肝胰腺中的脂质代谢活跃, 可能导致脂溶性污染物的同步富集; 而在产卵后或排空期, 脂质转移至卵巢, 肝胰腺中的污染物含量可能下降, 采样时间点处于母蟹生殖周期的不同阶段, 会直接影响膏体中的含量水平。因此, 可对同一养殖环境采样的公母蟹膏体中 SEM 含量的差异推测该青蟹所处的生长阶段。玉环市母蟹膏含量偏高, 可能反映出采样时母蟹正处于脂质积累高峰期; 而三门县和乐清市公蟹膏反超母蟹, 则可能意味着当地母蟹采样处于排空期, 或公蟹因摄食强度大、代谢速率高而导致污染物持续累积。

此外, 肌肉组织的含量差异同样值得关注。肌肉作为非靶向富集组织, 其污染物水平通常低于代谢活跃的肝胰腺。乐清市母蟹肉含量(0.14 μg/kg)低于公蟹肉(0.19 μg/kg), 可能暗示母蟹将更多脂质及伴随的污染物转运至生殖腺, 从而降低了肌肉中的残留。总体而言, 同一地域内公母蟹的含量差异并非单一因素所致, 而是生殖周期、脂质代谢、摄食行为与环境暴露共同作用的结果。这与同一部位不同批次青蟹 SEM 残留水平不谋而合。

2.5　不同采样时间青蟹中 SEM 残留水平

对 239 批次青蟹 478 频次有效数据按照不同采样时间等进行分析, 具体情况见表 3。

根据该表 3 可以发现从时间维度来看, 青蟹体内目标化合物的含量变化呈现出显著的季节性波动, 且这种波动与青蟹的生殖周期、脂质代谢及组织特异性密切相关。5 月下旬, 公蟹肉与膏的平均含量均为 0.24 μg/kg, 母蟹肉与膏平均含量分别为 0.17 μg/kg 和 0.21 μg/kg, 各部位含量差异较小, 反映出此时青蟹尚未进入性腺快速发育阶段, 脂质在肝胰腺和肌肉中的分布相对均衡。进入 7 月中旬, 公蟹肉含量降至 0.17 μg/kg 膏含量升至 0.32 μg/kg,, 母蟹因样本量较少

表 2　不同地域、青蟹性别 SEM 残留水平

Table 2　Residue levels of SEM in *Scylla paramamosain* of different sexes from different regions

地域	公蟹肉		公蟹膏		母蟹肉		母蟹膏	
	检出率(检出批次/总批次)/%	平均值±标准偏差/(μg/kg)	检出率(检出批次/总批次)/%	平均值±标准偏差/(μg/kg)	检出率(检出批次/总批次)/%	平均值±标准偏差/(μg/kg)	检出率(检出批次/总批次)/%	平均值±标准偏差/(μg/kg)
宁海县	100.0 (9/9)	0.17±0.04	100.0 (9/9)	0.31±0.19	12.5 (2/8)	0.17±0.09	75.0 (6/8)	0.27±0.23
三门县	84.2 (48/57)	0.19±0.11	93.0 (53/57)	0.34±0.22	91.7 (55/60)	0.17±0.11	93.3 (56/60)	0.31±0.24
温岭市	100.0 (5/5)	0.18±0.05	100.0 (5/5)	0.30±0.05	/	/	/	/
玉环市	100.0 (28/28)	0.18±0.06#	100.0 (28/28)	0.35±0.14	100.0 (22/22)	0.23±0.10#	100.0 (22/22)	0.40±0.21
乐清市	95.0 (19/20)	0.19±0.12	95.0 (19/20)	0.35±0.15#	90.0 (27/30)	0.14±0.05	90.0 (27/30)	0.26±0.13#

注: #表示同一地域内、同一组织(肌肉或膏体)中, 公蟹与母蟹 SEM 残留量经独立样本 *t* 检验存在显著差异(P<0.05), /表示温岭市采样的青蟹均为公蟹, 因此没有母蟹相关数据。

表 3　不同采样时间不同性别青蟹体内 SEM 残留水平

Table 3　Residue levels of SEM in *Scylla paramamosain* of different sexes at different sampling times

时间	公蟹肉		公蟹膏		母蟹肉		母蟹膏	
	检出率(检出批次/总批次)/%	平均值/(μg/kg)	检出率(检出批次/总批次)/%	平均值/(μg/kg)	检出率(检出批次/总批次)/%	平均值/(μg/kg)	检出率(检出批次/总批次)/%	平均值/(μg/kg)
5 月下旬	55.6 (10/18)	0.24	83.3 (15/18)	0.24	63.2 (12/19)	0.17	78.9 (15/19)	0.21
7 月中旬	100.0 (8/8)	0.17	100.0 (8/8)	0.32	50.0 (2/4)	0.17	100.0 (4/4)	0.33
8 月下旬至 9 月上旬	97.0 (32/33)	0.18	97.0(32/33)	0.32	90.9 (20/22)	0.20	90.9 (20/22)	0.28
9 月中旬	100.0 (28/28)	0.18	100.0 (28/28)	0.35	100.0 (22/22)	0.23	100.0 (22/22)	0.40
9 月下旬至 10 月上旬	96.9 (31/32)	0.19	96.9 (31/32)	0.41	94.3 (50/53)	0.14	94.3 (50/53)	0.32

注: 上旬指当月 1 日至 10 日, 中旬指当月 11 日至 20 日, 下旬至当月 21 日至 30 日或 31 日。

(仅 2/4 检出)数据波动较大, 但膏含量已显露出上升趋势。这一变化与青蟹在夏季进入生殖蜕壳高峰期密切相关——公蟹在交配前需大量积累能量, 脂溶性物质随之向肝胰腺富集, 而肌肉因代谢消耗或水分增加导致含量相对下降。8 月下旬至 9 月上旬, 公蟹膏平均含量稳定在 0.32 μg/kg, 母蟹膏为 0.28 μg/kg, 公蟹肉(0.18 μg/kg)与母蟹肉(0.20 μg/kg)均处于低位, 表明此时脂质及伴随的污染物正向生殖腺转移, 肌肉组织则因脂质含量低而成为“稀释”部位。9 月中旬, 母蟹膏含量进一步升至 0.40 μg/kg, 公蟹膏亦上升至 0.35 μg/kg, 且公蟹肉仍维持在 0.18 μg/kg, 反映出母蟹卵巢进入快速发育期, 脂溶性化合物随卵黄蛋白合成而加速富集。至 9 月下旬 10 月上旬, 母蟹膏含量有所下降为 0.32 μg/kg, 公蟹膏达到峰值为 0.41 μg/kg, 母蟹肉(0.14 μg/kg)与公蟹肉(0.19 μg/kg)仍维持低位波动, 这一格局清晰揭示了生殖周期驱动的组织重分配机制: 母蟹在繁殖前期将大量脂质及伴随的脂溶性污染物转运至卵巢, 导致膏体含量持续攀升[31]; 公蟹虽无卵巢发育需求, 但交配活动后摄食强度增加、代谢加快, 膏体含量亦保持较高水平但趋于稳定。整体而言, 时间序列数据印证了青蟹体内污染物含量并非静态, 而是随生殖周期、脂质迁移和组织代谢动态变化——膏体作为脂质储存与生殖腺发育的核心部位, 其含量峰值与母蟹卵巢成熟期高度重合; 肌肉则因脂质含量低、代谢周转快, 始终维持较低且稳定的水平。这种时间维度的差异化特征, 也为之前地域和性别间差异提供了生物学解释。

3 结 论

通过对三门湾与乐清湾沿岸 239 批次青蟹样本中 SEM 残留的系统分析, 揭示了其“高检出率、低残留浓度、内源性主导”的核心特征。从总体水平看, 478 个有效数据中检出值集中分布于 0.1~0.4 μg/kg 的优势区间, 呈典型正偏态分布, 仅 2 批次超过 1.0 μg/kg 的实际操作阈值; 单只青蟹 SEM 平均摄入量约 50 ng, 相当于实验动物毒性反应剂量的 1/300000, 表明食用安全风险极低。组织分布上, 蟹膏中 SEM 含量普遍高于蟹肉, 但 51.2%的样本膏/肉比值集中在 1~2 之间, 呈现结合态残留的均匀分布特征, 而非典型脂溶性污染物的极端富集模式, 因此喜食蟹膏者同样无需担忧。地域间差异不具统计学与环境学意义, 三门湾与乐清湾同属内源性背景区, 微小波动源于个体差异与采样误差; 性别差异虽显著但源于生殖周期驱动的脂质转运过程, 时间维度上含量随母蟹卵巢成熟期呈现规律性波动, 进一步佐证内源性主导机制。综上, 三门湾与乐清湾产青蟹中 SEM 残留本质上是受生殖周期调控的内源性本底现象, 其膳食暴露量较已知毒性阈值存在数个数量级的充裕安全边界。基于当前研究数据, 尚无充分证据表明该残留水平构成实质性食用安全风险。

参考文献

[1] 贺永健. 氨基脲对大鼠的神经行为毒性和氧化损伤毒性及其机制研究[D]. 广州: 华南农业大学, 2018: 38–40.
He Yongjian. The toxic effects of neurobehavioral and oxidative damage of semicarbazide on rats and its mechanism [D]. Guangzhou: South China Agricultural University, 2018: 38–40.

[2] Tian Xiuhui, Li Huanjun, Han Dianfeng, et al. Sources, toxicity and detection techniques of semicarbazide: a review [J]. Journal of Ocean University of China, 2021, 20(5): 1263–1275.

[3] Yang Guangxin, Ding Shuhai, Zhang Junyu, et al. Research progress on metabolites of nitrofurazone in aquatic products [J]. Heliyon, 2024, 10(8): e29735.

[4] 陈霞霞, 张祎, 项德胜, 等. 基于非靶向代谢组学研究呋喃西林胁迫下克氏原螯虾体内氨基脲的代谢[J]. 食品科学, 2023, 44(22): 235–242.
Chen Xiaxia, Zhang Yi, Xiang Desheng, et al. Untargeted metabolomics analysis of semicarbazide metabolism in *Procambarus clarkii* under nitrofurazone stress [J]. Food Science, 2023, 44(22): 235–242.

[5] 彭婕, 吕磊, 喻亚丽, 等. 中华绒螯蟹中内源性氨基脲的产生途径研究[J]. 淡水渔业, 2019, 49(3): 108–112.
Peng Jie, Lv Lei, Yu Yali, et al. Study on the formation approach of endogenous semicarbazide in *Eriocheir sinensis* [J]. Freshwater Fisheries, 2019, 49(3): 108–112.

[6] Yu Wenlong, Liu Weihua, Tian Wenrui, et al. Semicarbazide universality study and its speculated formation pathway [J]. Journal of Food Safety, 2019, 39: e12591.

[7] Guo Zhenghao, Xiong Ruheng, Yan Jun, et al. Role of bpfA in adhesion and biofilm formation of *Shewanella putrefaciens* CN32 under cold stress: a comprehensive transcriptomic analysis [J]. Food Science and Human Wellness, 2026, 15(1): 125–135.

[8] Wu Huizhen, Liu Zhi, Zhang Hu, et al. Identification of endogenous and exogenous semicarbazide (SEM) in *Crustacea* aquatic products using compound-specific nitrogen stable isotope ratio analysis (NSIRA) [J]. Journal of Food Composition and Analysis, 2023, 119: 105257.

[9] 叶春宇, 陈丽芝, 林一帆. 三门县青蟹产业发展现状、存在问题与对策[J]. 渔业信息与战略, 2025, 40(4): 272–276.
Ye Chunyu, Chen Lizhi, Lin Yifan. Status, existing problems and countermeasures of the development of mud crab industry in Sanmen County [J]. Fishery Information & Strategy, 2025, 40(4): 272–276.

[10] Rairat T, Keetanon A, Phansawat P, et al. The presence of semicarbazide in crustaceans collected from natural habitats in Thailand [J]. Chemosphere, 2024, 347: 140686.

[11] Leitner A, Zöllner P, Lindner W. Determination of the metabolites of nitrofuran antibiotics in animal tissue by high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Journal of Chromatography A, 2001, 939(1–2): 49–58.

[12] 张泓麟, 陈婉婷, 王晓燕, 等. 水产品中氨基脲的产生、代谢及控制方法研究进展[J/OL]. 食品工业科技, 2025-11-12. https://doi.org/10.13386/j.issn1002-0306.2025070246.
Zhang Honglin, Chen Wanting, Wang Xiaoyan, et al. Research progress

on the production, metabolism and control methods of semicarbazide in aquatic products [J/OL]. China Industrial Economics, 2025-11-12. https://doi.org/10.13386/j.issn1002-0306.2025070246.

[13] 高芳芳, 王迪, 陈胜军, 等. 罗氏沼虾氨基脲分布特征及贮藏变化研究[J]. 南方水产科学, 2023, 19(1): 147–154.
Gao Fangfang, Wang Di, Chen Shengjun, et al. Study on distribution characteristics and storage variation of semicarbazide in *Macrobrachium* rosenbergii [J]. South China Fisheries Science, 2023, 19(1): 147–154.

[14] Čavlović K, Villar-Lara J S, Reichel M, et al. Semicarbazide is a non-reliable marker in spray-dried red blood cells for nitrofurazone abuse [J]. Food Control, 2023, 148: 109650.

[15] 高宏泉, 吴反修, 张收元, 等. 甲壳类和贝类水产品出肉率、壳重率及折算系数研究[J]. 中国渔业经济, 2025, 43(2): 100–113.
Gao Hongquan, Wu Fanxiu, Zhang Shouyuan, et al. Study on meat yield, shell weight ratio, and conversion factors of crustaceans and mollusks [J]. Chinese Fisheries Economics, 2025, 43(2): 100–113.

[16] 檀东飞, 吴国欣, 林跃鑫, 等. 锯缘青蟹营养成分分析[J]. 福建师范大学学报(自然科学版), 2000, 16(4): 79–84.
Tan Dongfei, Wu Guoxin, Lin Yuexin, et al. Analysis of nutritional composition of *Scylla serrata* [J]. Journal of Fujian Teachers University (Natural Science), 2000, 16(4): 79–84.

[17] 周冬平, 刘磊, 付媛媛, 等. 黄河三角洲地区拟穴青蟹盐碱水池塘养殖技术研究[J]. 河北渔业, 2023(12): 13–15, 32.
Zhou Dongping, Liu Lei, Fu Yuanyuan, et al. Study on culture techniques of *Scylla* paramamosain in saline-alkali pond in the Yellow River Delta [J]. Hebei Fisheries, 2023(12): 13–15, 32.

[18] 高素. 氨基脲对斑马鱼(*Danio rerio*)抗雌激素效应研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2013: 52.
Gao Su. The research of anti-estrogenic effects of semicarbazide on zebrafish (*Danio rerio*) [D]. Qingdao: Ocean University of China, 2013: 52.

[19] Carpene C, Boulet N, Lasbories A, et al. The food contaminant semicarbazide reduces body weight gain and adiposity in mice in a manner not reproduced by other amine-oxidase inhibitors [J]. Annals of Nutrition and Metabolism, 2019, 75: 42.

[20] 高芳芳. 结合 HPLC-MS/MS 非靶向代谢组学解析罗氏沼虾中氨基脲(SEM)的体内生成机制[D]. 上海: 上海海洋大学, 2023: 48–49.
Gao Fangfang. Analysis of *in vivo* formation mechanism of semicarbazide (SEM) in *Macrobrachium rosenbergii* by HPLC-MS/MS non-targeted metabonomics [D]. Shanghai: Shanghai Ocean University, 2023: 48–49.

[21] 朱盼盼, 孙海新, 李兆新, 等. 不同虾的组织中氨基脲存在形态及含量分析[J]. 淡水渔业, 2022, 52(5): 17–24.
Zhu Panpan, Sun Haixin, Li Zhaoxin, et al. Formation and content analysis of semicarbazide in wild and aquacultured *Macrobrachium nipponense* tissues [J]. Freshwater Fisheries, 2022, 52(5): 17–24.

[22] Zhang Yi, Chen Xiaxia, Yu Haixia, et al. Investigation of the conversion mechanism of endogenous semicarbazide in shrimp on the amino acid level [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2023, 249: 114393.

[23] 徐磊, 孙博怿, 王俊, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法定量检测日本沼虾不同组织中氨基脲含量[J]. 食品安全质量检测学报, 2024, 15(2): 83–92.
Xu Lei, Sun Boyi, Wang Jun, et al. Quantitative determination of semicarbazide content in different tissues of *Macrobrachium nipponense* based on ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Journal of Food Safety & Quality, 2024, 15(2): 83–92.

[24] Camacho-Jiménez L, González-Ruiz R, Yepiz-Plascencia G. Persistent organic pollutants (POPs) in marine crustaceans: bioaccumulation, physiological and cellular responses [J]. Marine Environmental Research, 2023, 192: 106184.

[25] Cheng Changhong, Ma Hongling, Liu Guangxin, et al. Mechanism of cadmium exposure induced hepatotoxicity in the mud crab (*Scylla paramamosain*): activation of oxidative stress and Nrf2 signaling pathway [J]. Antioxidants, 2022, 11(5): 978.

[26] 赵越, 王志文, 唐泓洰, 等. 三门湾海水养殖适宜性评价及养殖规划研究[J]. 海洋湖沼通报(中英文), 2026, 48(3): 183–192.
Zhao Yue, Wang Zhiwen, Tang Honghao, et al. Studies on suitability evaluation and aquaculture planning of mariculture in Sanmen Bay [J]. Transactions of Oceanology and Limnology, 2026, 48(3): 183–192.

[27] 冉茂霞, 莫晓, 史永富, 等. 东海三门湾主要海产品中典型重金属累积状况[J]. 生态毒理学报, 2024, 19(2): 349–358.
Ran Maoxia, Mo Xiao, Shi Yongfu, et al. Typical heavy metals accumulation in main seafood of Sanmen Bay, the East China Sea [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2024, 19(2): 349–358.

[28] 熊伟光. 基于水质目标的乐清湾入海氮磷排放限值确定方法研究[D]. 北京: 中国环境科学研究院, 2025: 97–98.
Xiong Weiguang. Research on determination methods for nitrogen and phosphorus discharge limits into Yueqing Bay based on water quality objectives [D]. Beijing: Chinese Research Academy of Environmental Sciences, 2025: 97–98.

[29] 钟圳, 王有基, 黄伟. 全国(海洋)环境微塑料污染与管控: 第四届全国(海洋)环境微塑料污染与管控学术研讨会摘要集[C]//上海: 华东师范大学、上海市海洋湖沼学会、中国土壤学会环境微塑料工作组, 2023.
Zhong Zhen, Wang Youji, Huang Wei. National (marine) environmental microplastic pollution and control: Proceedings of the Fourth National Symposium on Marine Environmental Microplastic Pollution and Control [C]//Shanghai: East China Normal University, Shanghai Society of Oceanology and Limnology, Environmental Microplastic Working Group of the Soil Science Society of China, 2023.

[30] Fu Yin, Zhang Fengying, Wang Wei, et al. Temporal and spatial signatures of *Scylla paramamosain* transcriptome reveal mechanistic insights into endogenous ovarian maturation under risk of starvation [J]. International Journal of Molecular Sciences, 2024, 25(2): 700.

[31] 何先达, 钟文杰, 余金达, 等. 拟穴青蟹不同卵巢发育时期各组织的脂肪酸组成[J]. 汕头大学学报(自然科学版), 2022, 37(4): 41–50.
He Xianda, Zhong Wenjie, Yu Jinda, et al. Fatty acid composition of different tissues in different ovarian maturation stages of *Scylla paramamosain* [J]. Journal of Shantou University (Natural Science Edition), 2022, 37(4): 41–50.

(责任编辑: 蔡世佳　韩晓红)