

市售荔枝农药残留风险评估

蒋成^{1,2,3}, 林树花^{1,2,3}, 何双^{1,2,3}, 周雨佳¹, 李志坚^{1,2,3}, 苏东林^{1,2,3}, 尚雪波^{1,2,3*}

¹ 湖南省农业科学院农产品加工研究所(湖南省食品测试分析中心) 长沙 410125

² 农业农村部农产品质量安全风险评估实验室(长沙) 长沙 410125

³ 果蔬贮藏加工与质量安全湖南省重点实验室 长沙 410125

摘要 目的:明确市场销售荔枝农药残留状况及其膳食暴露风险。方法:对来自上海、杭州、南京、长沙、济南的 100 批次荔枝全果和果肉样品中 126 种农药残留进行检测,评估检出农药慢性膳食暴露风险和急性膳食暴露风险,并进行风险排序。结果:荔枝全果和果肉中农药残留检出率分别为 100%和 54%,检出数量分别为 38 种和 12 种,超标率分别为 43%和 0%。荔枝全果检出农药慢性膳食暴露风险范围为 0.00~21.75%,均值 1.05%,急性膳食暴露风险范围为 0.03%~37.00%,均值 2.99%。荔枝全果中检出高风险农药有毒死蝉、氯氰菊酯、灭多威、吡唑醚菌酯、氧乐果共 5 种,中、低风险检出农药分别为 8 种和 25 种。结论:5 个城市市售荔枝中农药残留慢性膳食暴露和急性暴露风险值均低于 100%,为可接受范围。荔枝全果农药残留状况不容乐观,果肉比全果农药残留水平更低,膳食暴露风险也更小。建议加快荔枝上使用农药的登记和必要农药最大残留限量(MRLs)的制修订。

关键词 荔枝; 农药残留; 风险评估; 膳食暴露风险; 风险排序

文章编号 1009-7848(2023)12-0209-10 DOI: 10.16429/j.1009-7848.2023.12.022

荔枝是无患子科荔枝属亚热带水果,原产于中国,被誉为“中华珍果”,富含多糖、膳食纤维、维生素、有机酸、氨基酸及微量元素等营养成分,具有一定免疫调节功能^[1-2],深受消费者青睐。我国是世界荔枝生产和消费第一大国,2020 年和 2021 年荔枝总产量分别达 255.35 万 t 和 281.41 万 t,主产区分布在广东、广西、海南、福建、四川和云南等地^[3-5]。荔枝适宜生长在高温、高湿气候,易发生病虫害,为降低生产损耗并提高种植效益,种植户常使用各种农药进行防控^[6-7]。荔枝种植户多以散户为主,生产管理参差不齐,质量安全意识不强,不合理、不规范甚至滥用农药现象仍然存在^[8]。

近年来随着消费结构升级,热带水果消费量日益增长,其质量安全也越来越受到关注。已有一些针对荔枝、杨桃、龙眼、火龙果、芒果、香蕉、西番莲等热带水果的农药残留风险评估^[9-18]。其中,在 2018-2021 年期间,王运儒等^[9]、Kuang 等^[10]及 Wang 等^[11]分别针对不同主产区开展了不同数量

样品的农药残留检测及风险评估,尽管以上提到的风险评估结果表明荔枝检出农药残留膳食暴露风险均较低,或在可接受范围内,但农药残留具体情况却存在较大差异。因为在荔枝生产至销售过程中,病虫害发生率、生产方式及农药使用品种都在不断更新变化^[19-21],因此,不同时期开展不同来源产区荔枝中农药残留状况监测及风险评估非常必要。目前,针对城市销售的覆盖多产区的荔枝农药残留风险评估还鲜见报道。为了解荔枝农药残留状况及其膳食暴露风险,本研究对我国几个大中城市市售荔枝开展农药残留风险评估,以期荔枝安全生产、农药残留标准制修订及质量安全监管等方面提供数据参考。

1 材料与方法

1.1 样品采集

2020 年 6-9 月,在大中城市上海、杭州、南京、长沙、济南的消费市场随机采集荔枝样品,品种包括兰竹荔枝、妃子笑荔枝、桂味荔枝、糯米荔枝、红花荔枝、荔枝王、白糖罂荔枝、鸡嘴荔枝、白腊荔枝、黑叶荔枝、岫山荔枝、玉荷包荔枝等 12 种,产地来源包括海南、广东、广西、福建、越南等地。采样地点主要为大型批发市场、超市、水果连

收稿日期: 2022-12-03

基金项目: 国家农产品质量安全风险评估重大专项
(GJFP2019013)

第一作者: 蒋成,男,博士,助理研究员

通信作者: 尚雪波 E-mail: shangxuebo@163.com

锁店、水果零售摊点等,共采集荔枝样本100批次,5个城市各20批次。每批次荔枝分别制成为全果(去核)和果肉样品各两份,于-20℃冷冻保存待测。

1.2 试剂与仪器

农药标准品126个(农业农村部环境保护科研检测所等);乙腈和甲醇(色谱纯),美国Merck公司;丙酮、正己烷、甲酸(色谱纯),美国TEDIA公司;氯化钠和硫酸镁(分析纯),国药集团;Mg-SO₄、PSA和GCB,岛津(上海)实验器材有限公司。AL-204电子天平,德国梅特勒-托利多公司;XHF-DY高速分散器,宁波新芝生物科技有限公司;N-EVAP氮吹仪,美国Organomation公司;TGL16-16M高速冷冻离心机,湖南湘仪实验室仪器开发有限公司;7890A和7890B气相色谱仪,美国Agilent公司;ACQUITY TQD液相色谱-串联四极杆液质联用仪,美国Waters公司;0.22 μm滤膜,天津博纳艾杰尔科技有限公司。

1.3 农药残留检测

对荔枝全果和果肉样品中杀虫剂、杀菌剂和杀螨剂共126种农药残留进行检测(表1),样品前处理和检测方法参照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》、GB/T 20769-2008《粮谷中486种农药及相关化学品残留量的测定 液相色谱-串联质谱法》和GB/T 20770-2008《水果和蔬菜中450种农药及相关化学品残留量的测定 液相色谱-串联质谱法》进行。根据全果、果肉、果核质量将测定的荔枝全果和果肉中农药残留值折算为全果(计入核重)中农药残留值,检测仪器采用Agilent 7890A-5975C气相色谱质谱联用仪、Waters ACQUITY UPLC TQD超高效液相色谱串联质谱仪。依据GB2763-2019《食品安全国家标准食品中农药最大残留限量》规定的农药最大残留限量(MRL),对荔枝全果和果肉样品中检出农药残留值进行判定分析。

表1 荔枝全果和果肉中检测的126种农药

Table 1 One hundred and twenty-six kinds of pesticides detected in the whole fruit and pulp of litchi

类别	名称
杀虫剂	甲胺磷、乙酰甲胺磷、氧乐果、乐果、杀扑磷、水胺硫磷、甲拌磷、马拉硫磷、甲基异柳磷、丙溴磷、杀螟硫磷、亚胺硫磷、辛硫磷、对硫磷、久效磷、甲基对硫磷、毒死蜱、敌敌畏、三唑磷、氯唑磷、敌百虫、氯氟菊酯、氯氟菊酯、氯氟菊酯、联苯菊酯、氰戊菊酯、甲氰菊酯、溴氰菊酯、醚菊酯、氯菊酯、灭多威、克百威、丁硫克百威、仲丁威、乙硫丙威、异丙威、速灭威、甲萘威、涕灭威、抗蚜威、吡虫啉、啉虫脒、噻虫啉、噻虫胺、烯啶虫胺、呋虫胺、噻虫啉、氯噻啉、氟啶虫胺胍、灭幼脲、除虫脲、虱螨脲、氟虫脲、氟铃脲、氟啶脲、噻嗪酮、灭蝇胺、氟苯虫酰胺、氯虫苯甲酰胺、溴氰虫酰胺、四氯虫酰胺、环溴虫酰胺、丁酰肼、甲氧虫酰胺、环虫酰胺、虫酰胺、呋喃虫酰胺;杀虫双、杀虫单、氟虫脲、螺虫乙酯、茚虫威、吡蚜酮、吡丙醚、虫螨脲、双丙环虫酯、乙螨唑、噻螨酮
杀菌剂和杀螨剂	吡唑醚菌酯、啞菌酯、醚菌酯、肟菌酯、啉菌酯、啉菌酯、烯肟菌酯、烯肟菌酯、烯肟菌酯、丁香菌酯、氟啶菌酯、唑菌酯;多菌灵、甲基硫菌灵、硫菌灵、噻菌灵、苯菌灵、三唑酮、丙环唑、腈菌唑、氟硅唑、腈茶唑、苯醚甲环唑、戊唑醇、咪鲜胺、抑霉唑、三氯杀螨醇、精甲霜灵、恶霉灵、甲霜灵、炔螨特、螺螨酯、啞螨灵、异菌脲、霜脲氰、腐霉利、百菌清、啞唑菌酮、啞霉胺、克菌丹、四螨嗪、霜霉威
植物生长调节剂	2,4-滴、茶乙酸、多效唑、噻苯隆、氯吡脲、对氯苯氧乙酸、烯效唑、胺鲜酯

1.4 膳食暴露风险评估和风险排序

1.4.1 慢性膳食暴露风险计算 根据农产品质量安全风险评估方法和已有风评研究^[22-24],慢性膳食摄入风险以每日摄入量估算值占每日允许摄入量(ADI)的百分比表示,计作%ADI。荔枝中农药残留的慢性膳食暴露风险(%ADI)的计算公式为(1)。STMR表示农药规范残留中位值,F表示荔枝消费

量,bw表示人群平均体质量,ADI(mg·kg⁻¹·bw)表示每日允许摄入量。目前,我国缺乏居民荔枝消费量数据,本研究中荔枝消费量参照WHO(GEMS/Food programme)中规定的G09区(包含中国)数据,荔枝日平均消费量为0.0291 kg·d,我国成年人质量按60 kg计^[25],ADI(mg/kg bw)数据来源于GB2763-2019。根据农药残留风险评估原则,%

ADI 值越小,慢性膳食暴露风险越小,%ADI 值小于 100.00%时,表示慢性膳食暴露风险可以接受,当%ADI 值大于 100.00%时,表示有不可接受的风险。

$$\%ADI = \frac{STMR \times F}{bw \times ADI} \times 100 \quad (1)$$

1.4.2 急性膳食暴露风险计算 根据已有研究^[26-27],急性膳食摄入风险以国际短期摄入量估算值占急性参考剂量(ARfD)的百分比表示,计作%ARfD。荔枝中农药残留的急性膳食暴露风险(%ARfD)按照公式(2)计算。HR 表示最高残留量,U 是以可食部分计的产品单个质量(kg),数据来源于 WHO (GEMS/Food programme)^[25];V 为变异因子,一批产品中不同个体或同一个体中不同部位的残留变异,一般取 3;ARfD 表示急性参考剂量,数据来源于 JMPR 报告^[28]。LP 表示大份餐(kg),是某类食品一餐的最大消费量。我国居民消费荔枝大份餐(LP)数据缺乏,参考 WHO 数据,荔枝大份餐为 0.2639 kg,单果可食部分质量为 0.0164 kg^[29]。安全界限(SM)通过公式(3)计算。根据农药残留风险评估原则,当%ARfD 小于或等于 100.00%时,表示风险可以接受,值越小风险越低;当%ARfD 值大于 100.00%时,表示有不可接受的风险。

$$\%ARfD = \frac{HR \times U \times \nu + (LP - U) \times HR}{bw} \times ARfD \times 100 \quad (2)$$

$$SM = \frac{ARfD \times bw}{U \times \nu + LP - U} \quad (3)$$

1.4.3 农药残留风险排序 农药残留风险排序参照英国兽药残留委员会的排序方法^[30]。A 为毒性(低毒、毒赋、高毒、剧毒分别赋值 2,3,4,5 分),B 为毒效($\geq 1 \times 10^{-2}$, $1 \times 10^{-4} \sim 1 \times 10^{-2}$, $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-4}$, $< 1 \times 10^{-6}$ mg/kg 分别赋值 0,1,2,3 分),C 为膳食比例($< 2.5\%$, $2.5\% \sim 20\%$, $20\% \sim 50\%$, $50\% \sim 100\%$ 分别赋值 0,1,2,3 分),D 为农药使用频率($< 2.5\%$, $2.5\% \sim 20\%$, $20\% \sim 50\%$, $50\% \sim 100\%$ 分别赋值 0,1,2,3 分),E 为高暴露人群(无、不太可能、有可能、无相关数据分别赋值 0,1,2,3 分),F 为检出农药残留水平(未检出、 $< 1MRL$, $1MRL \sim 10MRL$, $\geq 10MRL$ 分别赋值 1,2,3,4 分),按残留水平得分平均值计算。替代毒性的农药急性经口毒性(毒性经口半数致死量 LD₅₀)数据源自中国农药信息网^[31];用作毒效的 ADI 值源自 GB2763-2019;S 表

示检出农药残留风险得分,计算公式为(4),根据得分。检出农药被划分为 3 类,分别为高风险农药($S \geq 20.0$)、中风险农药($15.0 \leq S < 20.0$)、低风险农药($S < 15.0$)。

$$S = (A + B) \times (C + D + E) \times F \quad (4)$$

2 结果与分析

2.1 荔枝全果和果肉中农药残留情况

荔枝样品来源分别为海南 38 批次、广东 35 批次、广西 13 批次、福建 6 批次、越南 8 批次,样品来源情况见表 2,全果和果肉样品农药残留情况见表 3,农药多残留样品比例见图 1。全果样品中,农药残留检出率为 100%,共检出农药 38 种,包括高毒农药 2 种、中毒农药 9 种、低毒农药 27 种,检出率排前 3 的分别是毒死蜱、吡啶醚菌酯、除虫脲,单个样品最多检出农药 13 种,平均检出农药数为 6.3 种;根据食品安全国家标准(GB 2763-2019)和中国农药信息网查询^[31],荔枝全果检出农药中尚未制定限量标准的有 26 种,尚未登记使用的农药是 25 种。荔枝全果中检出的吡啶醚菌酯、苯醚甲环唑、氯氰菊酯农残鲜胺、氯氟菊酯、啉菌酯、百菌清、氧乐果共 8 种农药残留超标,超标率为 43%,其中吡啶醚菌酯超标率达 41%,其余 7 种农药超标率为 1%~3%。果肉样品中,农药残留检出率为 54%,共检出农药 12 种,包括高毒农药 1 种、中毒农药 1 种、低毒农药 10 种,检出率位排前 3 的分别是除虫脲、灭幼脲、咪鲜胺,单个样品中最多检出农药 7 种,平均检出农药数为 1.1 种(图 1 右)。根据 GB 2763-2019 标准判定,检出的 12 种农药均未超标。由于检出农药中仍有 26 种尚未制定最大残留限量标准(含个别不要求制

表 2 荔枝样品来源

Table 2 Source of litchi samples

采样城市	来源产区					合计
	海南	广东	广西	福建	越南	
上海	10	4	0	6	0	20
杭州	8	10	2	0	0	20
南京	6	12	0	0	2	20
长沙	7	8	1	0	4	20
济南	2	1	10	0	2	20
总数	38	35	13	6	8	100

定限量标准的低毒、低残留农药),可能导致检出不出农药登记在荔枝上使用,说明荔枝生产中超范围或滥用农药问题较为突出。

表3 荔枝全果和果肉中农药残留情况
Table 3 Pesticide residues in the whole fruit and pulp of litchi

农药	毒性	检出率/%		残留量范围/mg·kg ⁻¹		最大残留	超标率/%	
		全果	果肉	全果	果肉	限量/mg·kg ⁻¹	全果	果肉
毒死蜱	中毒	84	-	0.0056~0.7869	-	1	0	-
吡啶醚菌酯	低毒	71	5	0.0170~1.1287	0.0119~0.0306	0.1	39	0
除虫脲	低毒	70	32	0.0207~1.5480	0.0109~0.1146	-	-	-
氯氟菊酯	中毒	66	2	0.0151~1.3201	0.0211~0.0289	0.5	2	0
灭幼脲	低毒	46	29	0.0183~6.2534	0.0121~0.6626	-	-	-
咪鲜胺	低毒	42	13	0.0169~3.3840	0.0324~0.3215	2	2	0
啶菌酯	低毒	35	9	0.0164~0.5156	0.0133~0.1018	0.5	1	0
苯醚甲环唑	低毒	31	5	0.0240~0.7822	0.0102~0.0665	0.5	3	0
戊唑醇	低毒	23	7	0.0169~1.1376	0.0162~0.2602	-	-	-
多菌灵	低毒	21	6	0.0149~0.3723	0.0228~0.1105	0.5	0	0
氯氟菊酯	中毒	18	-	0.0240~0.3689	-	0.1	2	-
吡虫啉	低毒	15	2	0.0155~0.2869	0.0215~0.0326	-	-	-
氯虫苯甲酰胺	低毒	15	-	0.0250~0.3338	-	-	-	-
虫螨腈	低毒	10	-	0.0040~0.0822	-	-	-	-
甲氧菊酯	中毒	9	-	0.0058~0.4586	-	-	-	-
吡丙醚	低毒	9	-	0.0167~0.2919	-	-	-	-
丙溴磷	中毒	7	-	0.0100~0.0912	-	-	-	-
灭多威	高毒	7	3	0.0246~0.1517	0.0185~0.0274	-	-	-
噻虫胺	低毒	7	-	0.0236~0.0830	-	-	-	-
噻嗪酮	低毒	6	-	0.0236~0.1404	-	-	-	-
啶虫脒	中毒	5	-	0.0300~0.0841	-	-	-	-
噁唑菌酮	低毒	4	-	0.0240~0.2505	-	-	-	-
三唑磷	中毒	3	-	0.0173~0.0611	-	0.2	0	-
联苯菊酯	中毒	3	-	0.0064~0.0298	-	-	-	-
氯菊酯	低毒	3	-	0.0771~0.7671	-	-	-	-
四氯虫酰胺	低毒	3	-	0.0404~0.2655	-	-	-	-
啶氧菌酯	低毒	3	-	0.0364~0.0968	-	-	-	-
丙环唑	低毒	3	1	0.0153~0.1412	0.0315	-	-	-
百菌清	低毒	2	-	0.0100~0.0272	-	0.2	1	-
氧乐果	高毒	1	-	0.0791	-	0.02#	1	-
氯戊菊酯	中毒	1	-	0.0739	-	0.2#	0	-
仲丁威	低毒	1	-	0.1952	-	-	-	-
吡虫啉	低毒	1	-	0.1688	-	-	-	-
虱螨脲	低毒	1	-	0.06	-	-	-	-
甲氧虫酰胺	低毒	1	-	0.0366	-	-	-	-
茚虫威	低毒	1	-	0.6274	-	-	-	-
氟硅唑	低毒	1	-	0.047	-	-	-	-
三氯杀螨醇	低毒	1	-	0.0172	-	-	-	-

注:“#”表示热带和亚热带水果制定的最大农药残留限量值。

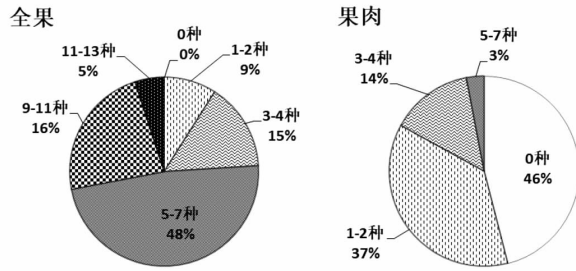


图 1 荔枝全果和果肉中农药多残留比例

Fig.1 Percentage of multiple pesticide residues in the whole fruit and pulp of litchi

2.2 荔枝中农药残留慢性和急性膳食暴露风险

根据农药残留检出情况、农药毒性等数据,根据公式(1)和(2)分别计算荔枝中 38 种检出农药

的慢性膳食暴露风险、急性膳食暴露风险及安全界限,结果见表 4。荔枝全果中检出农残慢性膳食暴露风险值范围为 0.00~21.75%, 均值 1.05%, 排在前三位的分别为:氧乐果 21.75%、茚虫威 5.18%、三唑磷 3.56%。急性膳食暴露风险范围为 0.03%~37.00%, 均值 2.99%, 排在前三位的分别为三唑磷 30.22%, 咪鲜胺 16.74%, 氯氟菊酯 16.33%、吡唑醚菌酯 11.17%、氯氟菊酯 9.12%。由于检出农药急、慢性摄入风险值均低于 100%, 且各检出农药残留量最高值均远低于其安全界限值, 说明荔枝农药残留风险低, 在可接受范围。由于果肉比荔枝全果检出农药残留水平更低, 其急慢性膳食暴露风险计算值更低(数据结果未列出), 同样在可接受范围。

表 4 荔枝全果农药残留慢性膳食暴露风险和急性膳食暴露风险

Table 4 Chronic dietary exposure risk and acute dietary exposure risk of pesticide residues in the whole fruit of litchi

参数	最高值/ mg·kg ⁻¹	农药残留 中值/mg·kg ⁻¹	每日允许摄 入量/mg·kg ⁻¹ bw	慢性膳食 暴露风险/%	急性参考剂 量/mg·kg ⁻¹ bw	急性膳食 暴露风险/%	安全界限/ mg·kg ⁻¹
毒死蜱	0.7869	0.0986	0.01	0.8135	0.1	3.8925	20.2224
吡唑醚菌酯	1.1287	0.1183	0.03	0.3253	0.05	11.1666	10.1112
除虫脲	1.548	0.1801	0.02	0.7429	-	-	-
氯氟菊酯	1.3201	0.1239	0.02	0.5111	0.04	16.3252	8.0890
灭幼脲	6.2534	0.7383	1.25	0.0487	-	-	-
咪鲜胺	3.384	0.1159	0.01	0.9562	0.1	16.7395	20.2224
啶菌酯	0.5156	0.0829	0.2	0.0342	-	-	-
苯醚甲环唑	0.7822	0.1042	0.01	0.8597	0.3	1.2898	60.6673
戊唑醇	1.1376	0.0543	0.03	0.1493	0.3	1.8758	60.6673
多菌灵	0.3723	0.0337	0.03	0.0927	0.5	0.3683	101.1122
氯氟菊酯	0.3689	0.0549	0.02	0.2265	0.02	9.1241	4.0445
吡虫啉	0.2869	0.0645	0.06	0.0887	0.4	0.3548	80.8898
氯虫苯甲酰胺	0.3338	0.0921	2	0.0038	-	-	-
虫螨腈	0.0822	0.0177	0.03	0.0487	0.03	1.3554	6.0667
甲氧菊酯	0.4586	0.0423	0.03	0.1163	0.03	7.5618	6.0667
吡丙醚	0.2919	0.0292	0.1	0.0241	-	-	-
丙溴磷	0.0912	0.0367	0.03	0.1009	1	0.0451	202.2245
灭多威	0.1517	0.0578	0.02	0.2384	0.02	3.7520	4.0445
噻虫胺	0.083	0.0307	0.1	0.0253	0.6	0.0684	121.3347
噻嗪酮	0.1404	0.0603	0.009	0.5528	0.5	0.1389	101.1122
啉虫脲	0.0841	0.0476	0.07	0.0561	0.1	0.4160	20.2224
噁唑菌酮	0.2505	0.0413	0.006	0.5679	0.6	0.2065	121.3347
三唑磷	0.0611	0.0432	0.001	3.5640	0.001	30.2241	0.2022
联苯菊酯	0.0298	0.0157	0.01	0.1295	0.01	1.4741	2.0222
氯菊酯	0.7671	0.1838	0.05	0.3033	-	-	-

(续表 4)

参数	最高值/ mg·kg ⁻¹	农药残留 中值/mg·kg ⁻¹	每日允许摄 入量/mg·kg ⁻¹ bw	慢性膳食 暴露风险/%	急性参考剂 量/mg·kg ⁻¹ bw	急性膳食 暴露风险/%	安全界限/ mg·kg ⁻¹
四氯虫酰胺	0.2655	0.1527	-	-	-	-	-
啉氧菌酯	0.0968	0.0781	0.09	0.0716	0.09	0.5320	18.2002
丙环唑	0.1412	0.0412	0.07	0.0486	0.3	0.2328	60.6673
百菌清	0.0272	0.0186	0.02	0.0767	0.6	0.0224	121.3347
氧乐果	0.0791	0.0791	0.0003	21.7525	0.02	1.9564	4.0445
氰戊菊酯	0.0739	0.0739	0.02	0.3048	0.2	0.1828	40.4449
仲丁威	0.1952	0.1952	0.06	0.2684	-	-	-
吡虫啉	0.1688	0.1688	0.2	0.0696	1	0.0835	202.2245
虱螨脲	0.06	0.06	0.02	0.2475	-	-	-
甲氧虫酰肼	0.0366	0.0366	0.1	0.0302	0.9	0.0201	182.0020
茚虫威	0.6274	0.6274	0.01	5.1761	0.1	3.1035	20.2224
氟硅唑	0.047	0.047	0.007	0.5539	0.02	1.1625	4.0445
三氯杀螨醇	0.0172	0.0172	0.002	0.7095	0.2	0.0425	40.4449

2.3 荔枝中农药残留风险排序

参照已有荔枝风险评估相关数据^[7],我国居民荔枝摄入量占总膳食比例为 2.5%~20%, 农药使用频率约为 3.8%, 确定荔枝膳食比例(C)和农药使用频率(D)赋值均为 1。由于目前缺乏高暴露人群相关数据, 将高暴露人群(E)赋值为 3, 根据检出农药残留风险得分(S)进行风险排序(图 2), 根据划分标准, 检出的高风险农药有毒死蜱、氯氟菊酯、灭多威、吡啶醚菌酯、氧乐果 5 种, 中风险农药有氯氟氰菊酯、除虫脲、甲氧菊酯、丙溴磷、啉虫脲、联苯菊酯、三唑磷、氰戊菊酯 8 种, 低风险农药有灭幼脲、咪鲜胺、啉菌酯、苯醚甲环唑、戊唑醇等 25 种, 高、中、低风险农药分别占全部检出农药种数的 13.1%, 21.1%, 65.8%。

3 结论与讨论

3.1 农药残留状况

相比主产区产地(或基地)采样, 市售荔枝样品产地信息主要来源于样品销售标识或销售商口头提供, 信息可能存在不够精准, 但仍可反映消费市场荔枝农药残留水平基本状况。本文中 100 批次荔枝有 8 批次来源于越南, 尽管占比 8% 远高于该年进口荔枝占国内总产量约 1% 的比例(根据海关总署数据, 2020 年我国荔枝进口和国内总产量分别为 2.44 万 t 和 255.35 万 t), 但

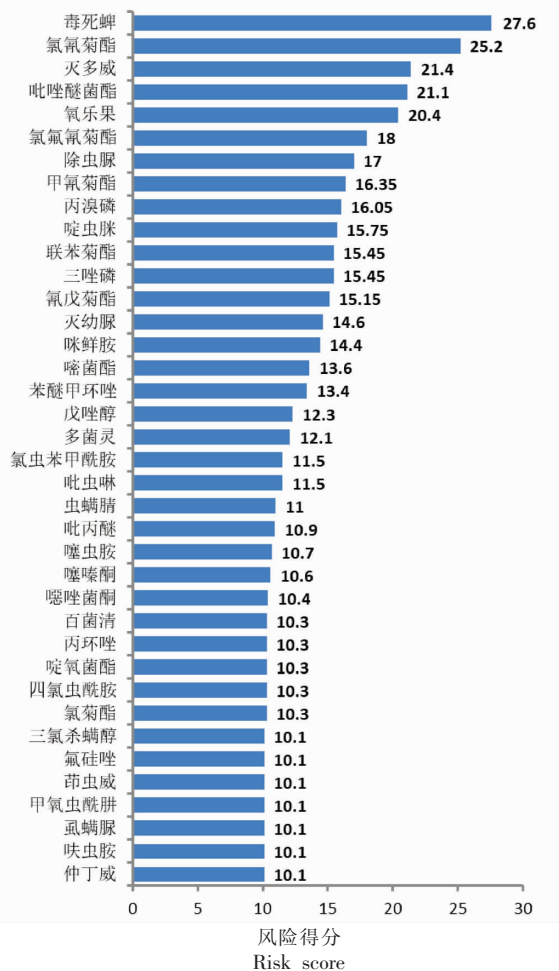


图 2 荔枝全果中 38 种检出农药的残留风险排序

Fig.2 Residual risk ranking of 38 pesticides detected in the whole fruit of litchi

检测发现在荔枝全果样品中检出的 2 种高毒农药灭多威、氧乐果都来源于国内主产区,一定程度上说明在荔枝生产中超范围或滥用农药、使用了含隐性添加的农药及质量安全全程监管不够等有关问题在国内产区仍然突出。相比最近几个针对荔枝的农药残留风险评估^[9-11],本研究中市售荔枝是同时包含国内外主产区(越南来源),农药残留检测种数覆盖最宽(达 126 种),使得检出农药种数也最多(38 种),农药检出率达 100%,超标率达 43%。但是,相比今年报道的荔枝风险评估研究中样品数量(分别为 155 批次和 268 批次)^[10-11],本研究样品数量(100 批次)相对偏少,这可能使得有关结果与实际情况存在偏差。

3.2 农药残留膳食暴露风险及风险排序

本评估中市售荔枝全果中农药残留慢性膳食暴露风险和急性膳食暴露风险计算值均为可接受水平,但由于采用的是英国兽药残留委员会的风险评估模型和方法,评估过程中,尚存在居民膳食摄入、暴露人群情况等基础数据陈旧或缺乏,风险评估样品覆盖区域及数量有限等问题,可能使得膳食暴露风险计算和农药风险排序结果存在偏差,更精准的风险评估结果仍然需要进一步的拓展研究。此外,由于果肉检出农药残留水平比全果均更低,且没有检出超标农药,说明在荔枝消费中实际农药残留膳食暴露风险比全果评估获得的膳食暴露风险值更低。

3.3 结论

5 个城市市售荔枝中检出农药残留急性膳食暴露和慢性膳食暴露风险均低于 100%,为可接受风险。荔枝全果中农药残留状况不容乐观,检出农药种数明显多于果肉,5 种高风险检出农药中涉及的高毒农药灭多威和氧乐果值得重点关注。荔枝中未登记使用的(25 种)和未制定最大残留限量的(26 种)检出农药占比较高,对荔枝生产过程规范用药和质量安全超标判定有明显不利影响。总之,为提高荔枝质量安全水平,要对检出高风险及超标农药进行溯源查因,从源头上解决荔枝中农药残留相关的质量安全问题,同时,建议加快荔枝使用农药登记数据更新和农药最大残留限量标准的制修订,进一步加大荔枝生产过程中质量安全全程监管力度。

参 考 文 献

- [1] HUANG F, LIU Y, ZHANG R F, et al. Chemical and rheological properties of polysaccharides from litchi pulp [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2018, 112(7): 968-975.
- [2] 刘洋, 黄菲, 李巍巍, 等. 荔枝多糖的超声-微波提取工艺优化及其免疫调节作用[J]. *中国食品学报*, 2019, 19(4): 184-190.
LIU Y, HUANG F, LI W W, et al. Optimization of ultrasonic microwave extraction technology of lychee polysaccharide and its immunomodulatory effect [J]. *Journal of Chinese Institute of Food Science and Technology*, 2019, 19(4): 184-190.
- [3] 陈厚彬, 苏钻贤. 2021 年全国荔枝生产形势分析[J]. *中国热带农业*, 2021, 18(2): 5-18.
CHEN H B, SU Z X. Analysis of national litchi production situation in 2021[J]. *China Tropical Agriculture*, 2021, 18(2): 5-18.
- [4] 陈厚彬, 苏钻贤, 杨胜男. 2022 年全国荔枝生产形势分析[J]. *中国热带农业*, 2022, 19(3): 5-14.
CHEN H B, SU Z X, YANG S N. Analysis of national litchi production situation in 2022[J]. *China Tropical Agriculture*, 2022, 19(3): 5-14.
- [5] 庄丽娟, 邱泽慧. 2019 年中国荔枝产业发展特征与政策建议[J]. *中国南方果树*, 2021, 50(4): 184-188.
ZHUANG L J, QIU Z H. Development characteristics and policy suggestions of China's litchi industry in 2019[J]. *South China Fruits*, 2021, 50(4): 184-188.
- [6] 姜子德, 习平根, 冼继东, 等. 对未来五年我国荔枝植保研究的思考[J]. *中国热带农业*, 2011, 7(5): 61-63.
JIANG Z D, XI P G, XIAN J D, et al. Thoughts on the research of plant protection of litchi in China in the next five years[J]. *China Tropical Agriculture*, 2011, 7(5): 61-63.
- [7] 潘喜芳, 李丽燕, 蒋扬柏, 等. 钦州荔枝农药使用现状及分析[J]. *中国农业文摘-农业工程*, 2017, 29(4): 51-53.
PAN X F, LI L Y, JIANG Y B, et al. Current situation and analysis of pesticide use in litchi in Qinzhou[J]. *Chinese Agricultural Digest: Agriculture Engineering*, 2017, 29(4): 51-53.

- [8] 娄博杰, 宋敏, 韩洁. 农户农药使用行为特征及规范化建议——基于东部6省调研数据[J]. 中国农学通报, 2014, 30(23): 124-128.
- LOU B J, SONG M, HAN J. Characteristics of farmer's pesticides application behavior and standardization recommendation-based on the investigation data in six provinces of eastern China[J]. Chinese Agricultural Science Bulletin, 2014, 30(23): 124-128.
- [9] 王运儒, 邓有展, 陈永森, 等. 广西荔枝农药残留现状及膳食风险评估[J]. 南方农业学报, 2018, 49(9): 1804-1810.
- WANG Y R, DENG Y Z, CHEN Y S, et al. State and dietary intake risk assessment of pesticide residue in litchi in Guangxi[J]. Journal of Southern Agriculture, 2018, 49(9): 1804-1810.
- [10] KUANG L X, XU G F, TONG Y, et al. Risk assessment of pesticide residues in Chinese litchis[J]. Journal of Food Protection, 2021, 85(1): 98-103.
- [11] WANG S W, ZENG X N, WANG X N, et al. A survey of multiple pesticide residues on litchi: A special fruit[J]. Microchemical Journal, 2022, 175(4): 10175-10182.
- [12] 蒋成, 林树花, 何双, 等. 主产区杨桃中农药残留风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2020, 11(24): 9496-9502.
- JIANG C, LIN S H, HE S, et al. Risk assessment of pesticide residues in carambola in main producing areas[J]. Journal of Food Safety and Quality, 2020, 11(24): 9496-9502.
- [13] 黄敏兴, 高裕锋, 甄振鹏, 等. 广东省部分地区市售龙眼中药残留现状与膳食暴露评估[J]. 中国食品卫生杂志, 2021, 33(1): 86-92.
- HUANG M X, GAO Y F, ZHEN Z P, et al. Monitoring and risk assessment of pesticide residues in longan samples in several areas of Guangdong Province[J]. Chin J Food Hyg, 2021, 33(1): 86-92.
- [14] 王盼, 郭晓杰, 段云, 等. 火龙果农药残留膳食暴露风险评估[J]. 热带作物学报, 2021, 42(7): 2076-2084.
- WANG P, GUO X J, DUAN Y, et al. Risk Assessment of dietary intake of pesticide residues in pitaya[J]. Chinese Journal of Tropical Crops, 2021, 42(7): 2076-2084.
- [15] 马晨, 张群, 刘春华, 等. 芒果果实中农药残留分布及慢性膳食摄入风险[J]. 食品工技, 2022, 43(3): 231-239.
- MA C, ZHANG Q, LIU C H, et al. Distribution of pesticide residue in mango fruits and chronic dietary risk[J]. Science and Technology of Food Industry, 2022, 43(3): 231-239.
- [16] 马晨, 张群, 刘春华, 等. 香蕉中农药多残留分析及短期膳食摄入风险评估[J]. 农药学报, 2022, 24(1): 161-167.
- MA C, ZHANG Q, LIU C H, et al. Pesticide multi-residue analysis and short-term dietary risk assessment in bananas[J]. Chinese Journal of Pesticide Science, 2022, 24(1): 161-167.
- [17] 王运儒, 陈永森, 杜国冬, 等. 两广地区西番莲农药残留调查及风险评估[J]. 西南农业学报, 2017, 30(12): 2793-2798.
- WANG Y R, CHEN Y S, DU G D, et al. Pesticide residue investigation and risk assessment of passion fruit in Guangdong and Guangxi[J]. Southwest China Journal of Agricultural Sciences, 2017, 30(12): 2793-2798.
- [18] YANG X F, LUO J H, LI S H, et al. Evaluation of nine pesticide residues in three minor tropical fruits from southern China[J]. Food Control, 2016, 60(2): 675-682.
- [19] 马晨, 张群, 段云, 等. 荔枝上植物生长调节剂使用与残留现状分析[J]. 热带农业科学, 2019, 39(4): 67-75.
- MA C, ZHANG Q, DUAN Y, et al. Liqiang.usage and residues of plant growth regulators on litchi[J]. Chinese Journal of Tropical Agriculture, 2019, 39(4): 67-75.
- [20] 王思威, 王潇楠, 常虹, 等. QuEChERS-高效液相色谱-串联质谱法检测荔枝中氯虫苯甲酰胺、溴氰虫酰胺及代谢物残留[J]. 农药学报, 2022, 24(2): 395-403.
- WANG S W, WANG X N, CHANG H, et al. Determination of chlorantraniliprole, cyantraniliprole and its metabolites residues in litchi using QuEChERS and high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Chinese Journal of Pesticide Science, 2022, 24(2): 395-403.
- [21] 吴学进, 刘春华, 罗金辉, 等. QuEChERS净化-超高效液相色谱-串联质谱法同步测定荔枝中10种植物生长调节剂残留[J]. 南方农业学报, 2020, 51(10): 2532-2539.

- WU X J, LIU C H, LUO J H, et al. Simultaneous determination of ten plant growth regulators residues in litchi by QuEChERS clean up-ultra high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Journal of Southern Agriculture, 2020, 51(10): 2532-2539.
- [22] 钱永忠, 李耘. 农产品质量安全风险评估: 原理、方法和应用[M]. 北京: 中国标准出版社, 2007.
- QIANG Y Z, LI Y. Risk assessment of quality and safety of agricultural products: principles, methods and applications [M]. Beijing: Standards Press of China, 2007.
- [23] LI Z X, NIE J Y, YAN Z, et al. A monitoring survey and dietary risk assessment for pesticide residues on peaches in China[J]. Regulatory Toxicology and Pharmacology, 2018, 6(97): 152-162.
- [24] 李海飞, 聂继云, 徐国锋, 等. 桃中农药残留分析及膳食暴露评估研究[J]. 分析测试学报, 2019, 38(9): 1066-1076.
- LI H F, NIE J Y, XU G F, et al. Study on pesticide residue analysis and dietary exposure assessment in peach[J]. Acta Anal Sin, 2019, 38(9): 1066-1076.
- [25] World Health Organization (WHO). Global environment monitoring system-food contamination monitoring and assessment programme (GEMS/food)[EB/OL]. (2019-12-07)[2022-09-29]. <https://www.who.int/teams/nutrition-and-food-safety/databases/global-environment-monitoring-system-food-contamination>.
- [26] 高仁君, 王蔚, 陈隆智, 等. JMPR 农药残留急性膳食摄入量计算方法[J]. 中国农学通报, 2006, 22(4): 101-105.
- GAO R J, WANG W, CHEN L Z, et al. JMPR pesticide residue acute dietary exposure assessment method[J]. Chin Agric Sci Bull, 2006, 22(4): 101-105.
- [27] LI H F, NIE J Y, XU G F, et al. Study on pesticide residue analysis and dietary exposure assessment in peach[J]. Acta Analytica Sinica, 2019, 38(9): 1066-1076.
- [28] Food and Agriculture Organization of the United Nations (FAO). Submission and evaluation of pesticide residues data for estimation of maximum residue levels in food and feed (FAO plant production and protection paper 197)[M]. Rome: FAO, 2009.
- [29] World Health Organization. IESTI calculation data overview[EB/OL]. (2019-05-10)[2022-09-29]. https://www.who.int/foodsafety/areas_work/chemical-risks/gems-food/en/.
- [30] The Veterinary Residues Committee (VRC). Annual Report on Surveillance for Veterinary Residues in Food in the UK 2007[EB/OL]. (2017-01-12)[2022-09-29]. https://www.gov.uk/government/uploads/system/uploads/attachment_data/file/243614/9780108507656.pdf.
- [31] 中华人民共和国农业农村部农药检定所. 中国农药信息网[DB/OL]. (2021-12-07)[2022-09-29]. <http://www.chinapesticide.org.cn/zwb/dataCenter>. Institute for the Control of Agrochemicals, Ministry of Agriculture and Rural Affairs of the People's Republic of China. China pesticide information network [DB/OL]. (2021-12-07)[2022-09-29]. <http://www.chinapesticide.org.cn/zwb/dataCenter>.

Risk Assessment of Pesticide Residues in Litchi on the Market

Jiang Cheng^{1,2,3}, Lin Shuhua^{1,2,3}, He Shuang^{1,2,3}, Zhou Yujia¹, Li Zhijian^{1,2,3}, Su Donglin^{1,2,3}, Shang Xuebo^{1,2,3*}

¹Hunan Agricultural Products Processing Institute (Hunan Food Test and Analysis Center),

Hunan Academy of Agricultural Sciences, Changsha 410125

²Laboratory of Quality & Safety Risk Assessment for Agro-products (Changsha),

Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Changsha 410125

³Hunan Key Laboratory of Fruits & Vegetables Storage, Processing, Quality and Safety, Changsha 410125

Abstract Objective: To understand the status of the pesticide residues and their dietary exposure risk of litchi sold in city markets. Methods: 126 pesticide residues in 100 batches samples of the whole fruit and pulp of litchi collected from Shanghai, Hangzhou, Nanjing, Changsha and Jinan were detected and analyzed. The risk of chronic dietary exposure and acute dietary exposure of the residues were assessed and ranked. Results: The detection rate of pesticide residues in the

whole fruit and pulp of litchi was 100% and 54%, the number of the pesticides detected was 38 and 12, and the exceeding rate is 43% and 0%, respectively; The risk range of pesticide chronic dietary exposure was 0.00~21.75%, with an average of 1.05%, and the risk range of acute dietary exposure was 0.03~37.00%, with an average of 2.99%. There were 5 kinds of high risk pesticides, including chlorpyrifos, cypermethrin, methomyl, pyrazolidoxifen and omethoate, and the medium and low risk pesticides were 8 and 25 respectively. Conclusion: The risk values of chronic dietary exposure and acute dietary exposure of pesticide residues in the whole fruit of litchi sold in five cities were lower than 100%, which was acceptable; The situation of pesticide residues in the whole fruit of litchi was not optimistic, the pesticide residues level in pulp is lower than that in the whole fruit, thus their dietary exposure risk is also lower; It was suggested that the registration of pesticides used in litchi and the formulation and revision of the maximum residue limits (MRLs) required.

Keywords litchi; pesticide residues; risk assessment; dietary exposure risk; risk ranking