

DOI: 10.7524/AJE.1673-5897.20190107005

杨妙峰, 郑盛华, 席英玉, 等. 福建东山湾养殖贝类重金属污染状况及健康风险评估[J]. 生态毒理学报, 2019, 14(5): 308-317

Yang M F, Zheng S H, Xi Y Y, et al. Pollution status and health risk assessment of heavy metals in shellfishes cultured in Dongshan Bay, Fujian Province [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2019, 14(5): 308-317 (in Chinese)

福建东山湾养殖贝类重金属污染状况及健康风险评估

杨妙峰^{1,2}, 郑盛华^{1,2}, 席英玉^{1,2}, 林娇^{1,2}, 罗冬莲^{1,2,*}

1. 福建省水产研究所, 福建省海洋生物增殖与高值化利用重点实验室, 厦门 361013

2. 福建省海洋生物资源开发利用协同创新中心, 厦门 361013

收稿日期: 2019-01-07 录用日期: 2019-05-15

摘要: 为了解东山湾海水养殖贝类重金属污染状况及健康风险水平, 2016年11月采集了华贵栉孔扇贝(*Chlamys nobilis*)、菲律宾蛤仔(*Ruditapes philippinarum*)、鲍(*Haliotis* sp.)、巴非蛤(*Paphia* sp.)、牡蛎(*Saccostrea* sp.)和翡翠贻贝(*Perna viridis*)等6种常见贝类, 对其污染指数、膳食暴露量和健康风险等进行评价。结果表明, 东山湾贝类体内Cu、Zn、Pb、Cd、Cr、As和Hg含量(均值)分别为9.69、0.19、43.5、0.65、0.21、0.010和1.69 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, 与第一类海洋生物质量标准限值相比, Cu、Pb、Zn、Cd、Cr和As的超标率分别为16.7%、83.3%、33.3%、33.3%、16.7%和100%; 但除华贵栉孔扇贝Cd含量超标外, Pb、Cr、Hg和As含量均能满足食品中污染物限量标准要求。尽管东山湾贝类总致癌风险 $R_c=1.65\times10^{-4}$, 存在一定的健康风险, 但5种贝类体内重金属含量略低于我国东部-南部沿海贝类的平均水平, 且2010—2017年期间东山湾牡蛎体内重金属污染状况没有明显变化(养殖生物质量指数<5%), 加上重金属膳食暴露风险较低, 总非致癌风险 $R_n=0.94(<1)$, 总体而言贝类质量状况尚可。

关键词: 重金属; 养殖贝类; 健康风险; 膳食暴露; 养殖生物质量指数法

文章编号: 1673-5897(2019)5-308-10 中图分类号: X834 文献标识码: A

Pollution Status and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Shellfishes Cultured in Dongshan Bay, Fujian Province

Yang Miaofeng^{1,2}, Zheng Shenghua^{1,2}, Xi Yingyu^{1,2}, Lin Jiao^{1,2}, Luo Donglian^{1,2,*}

1. Key Laboratory of Cultivation and High-value Utilization of Marine Organisms in Fujian Province, Fisheries Research Institute of Fujian, Xiamen 361013, China

2. Fujian Collaborative Innovation Center for Exploitation and Utilization of Marine Biological Resources, Xiamen 361013, China

Received 7 January 2019 accepted 15 May 2019

Abstract: To understand the pollution status and the health risk level of heavy metals in shellfishes, six typical species of shellfishes were collected from Dongshan Bay, Fujian Province in November of 2016, including *Chlamys nobilis*, *Ruditapes philippinarum*, *Haliotis* sp., *Paphia* sp., *Saccostrea* sp. and *Perna viridis*. Pollution index of heavy metals in these shellfishes and the related dietary exposure and human health risk were all evaluated. The results indicated that the mean content of copper (Cu), zinc (Zn), lead (Pb), cadmium (Pb), chromium (Cr), arsenic (As) and mercury (Hg) in these shellfishes were 9.69, 0.19, 43.5, 0.65, 0.21, 0.010 and 1.69 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, respectively. Compared to the standard limits for the primary category of marine life quality, the excess rates of Cu, Pb, Zn, Cd, Cr and As

基金项目: 福建省省属公益类科研院所基本专项(2017R1003-9); 福建省海洋与渔业结构调整项目(2019HYJG07, 2019HYJG10)

作者简介: 杨妙峰(1979—), 女, 硕士, 助理研究员, 研究方向为海洋与渔业生态环境研究, E-mail: miaofenf@sina.com

* 通讯作者 (Corresponding author), E-mail: 295807046@qq.com

were 16.7%, 83.3%, 33.3%, 33.3%, 16.7% and 100%, respectively. However, in terms of meeting the allowable standard limits for pollutants in food, except Cd in *Chlamys nobilis* exceeding the recommended value, all the other heavy metals including Pb, Cr, Hg and As met the standards. In addition, the average contents of six heavy metals in shellfish from Dongshan Bay were slightly lower than those from the eastern and southern coastal areas of China, and the pollution index of heavy metals in oysters did not change significantly from 2010 to 2017 (quality index of aquaculture organism was less than 5%). After calculation, the total carcinogenic risk of shellfish in Dongshan Bay was $R_c = 1.65 \times 10^{-4}$, the total noncarcinogenic risk was $R_n = 0.94$, and the risk of heavy metals in diet exposure was lower. Therefore, although the health risk can not be excluded, the general quality of shellfishes in Dongshan Bay was still acceptable.

Keywords: heavy metals; cultured shellfish; health risk; dietary exposure; the quality index method of aquaculture organism

海湾是江河的入海汇入口,营养物质丰富,富足的饵料生物及相对封闭的自然条件,使其成为重要的海洋生物产卵场、索饵场及重要的海水养殖区域,其受到陆海相互作用以及人类活动的强烈干扰,也承接了人类开发活动带来的大量污染物,是环境变化和生态系统的敏感区域^[1]。近年来,随着东山湾大开发的进程和海洋经济的迅速发展,海洋生态环境受到较大的威胁,渔业环境污染问题日益突出^[2-3]。

重金属污染具有持久性、积累性和不可降解的特点,通过食物链直接或间接进入人体,并最终对人体健康产生影响,海产品中重金属污染水平调查及人体健康风险评价也日益得到重视^[1,4-8]。底栖滤食性贝类生长位置相对固定,对污染物(特别是重金属污染物)富集累积能力较强^[9],质量状况与养殖环境的优劣休戚相关,如牡蛎和贻贝等常作为近岸海域环境监测的污染指示生物;贝类还是我国沿海重要的食物来源之一,贝类养殖是漳州市海水养殖的主体(占 81.0%,2016 年)^[10],当地居民对贝类的食用需求较高,贝类的膳食消费也是人类暴露于各种污染物的一种重要途径,其食用安全不容小觑。本文以东山湾为研究区域,分析了该区域 6 种主要养殖贝类体内 7 种重金属(Cu、Zn、Pb、Cd、Cr、Hg 和 As)的污染状况,并评估其膳食暴露的健康风险,旨在了解当地贝类产品的污染水平及食用安全性,并对其风险管理提供一定参考依据。

1 材料与方法(Materials and methods)

1.1 样品采集与处理

2016 年 11 月在东山湾(117.45°~117.60°E;23.65°~23.90°N)分别采集华贵栉孔扇贝(*Chlamys nobilis*)、菲律宾蛤仔(*Ruditapes philippinarum*)、鲍(*Haliotis*

sp.)、巴非蛤(*Paphia* sp.)、牡蛎(*Saccostrea* sp.)和翡翠贻贝(*Perna viridis*)等 6 种海水养殖贝类样品;2010—2017 年,每年 9 月份在东山湾进行一次僧帽牡蛎样品采集,采样点如图 1 所示。每个样品采集 3 kg 以上,所有样品的采集、保存和前处理均按照《GB17378—2007 海洋监测规范》^[11-12]的要求执行。

1.2 样品分析与质量控制

按照《GB17378.6—2007 海洋监测规范》^[12]规定的原子吸收分光光度法和原子荧光法分别对样品中铜(Cu)、铅(Pb)、锌(Zn)、镉(Cd)、铬(Cr)、总汞(Hg)和砷(As)的含量进行检测,每批样品同步设分析空白,并以 GBW10024(GSB-15)扇贝成分分析标准物质作为质控样验证方法准确性。

1.3 评价方法

1.3.1 污染状况评价

(1)单因子污染指数法

$S_i = C_i / C_s$,式中: C_i 为第 i 类评价因子的实测浓

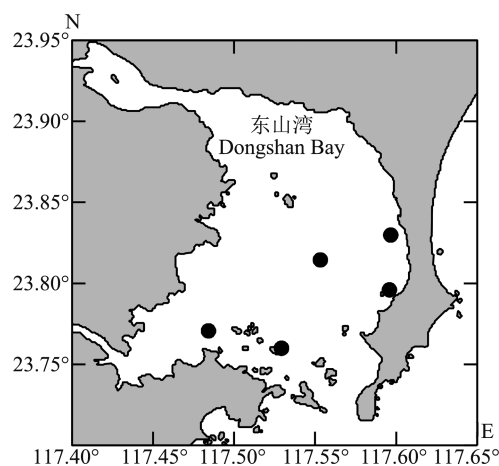


图1 东山湾采样示意图

Fig. 1 Sampling map of Dongshan Bay

度, C_s 为第 i 类评价因子的参比标准。

(2) 内梅罗综合污染指数法^[13]

$P = \sqrt{(S_{\text{最大}}^2 + S_{\text{平均}}^2)/2}$, 式中: $S_{\text{最大}}$ 为各评价因子计算结果中, 单因子污染指数的最大值, $S_{\text{平均}}$ 为单因子污染指数的平均值。若 $P \leq 1$, 污染程度为无污染; $1 < P \leq 2$, 轻度污染; $2 < P \leq 3$, 中度污染; $P > 3$, 重度污染。

(3) 金属污染指数(MPI)^[4]

$MPI = \sqrt[n]{c_1 \times c_2 \times c_3 \times \dots \times c_n}$, 式中: C_n 表示样品中金属 n 的浓度。

(4) 污染状况过程评价——养殖生物质量指数 ΔR_F

养殖生物质量指数法通过对典型养殖生物(僧帽牡蛎)质量的变化情况来表征养殖环境重金属污染状况的变化。

$$\Delta R_F = 1 - \frac{R_{F\text{长期}}}{R_{F\text{短期}}}$$

式中: ΔR_F 为养殖生物质量指数, $R_{F\text{长期}}$ 为东山湾代表养殖生物(此处选僧帽牡蛎)污染指数的长期年平均值, $R_{F\text{短期}}$ 为养殖生物污染指数的短期年平均值。

通常, 若 $R_{F\text{长期}} > R_{F\text{短期}}$, 则 $\Delta R_F < 0$, 生物质量呈向好趋势; 若 $R_{F\text{短期}} > R_{F\text{长期}}$, $\Delta R_F > 0$, 生物质量趋差。若 $|\Delta R_F| < 5\%$, 表明生物质量波动不大, 海洋渔业养殖区功能较为稳定; 若 $5\% \leq |\Delta R_F| < 10\%$, 表明生物质量存在一定变化, $\Delta R_F < 0$ 时养殖功能开始好转, $\Delta R_F > 0$ 时养殖功能开始受损; 若 $|\Delta R_F| > 20\%$, 生物质量发生明显变化, $\Delta R_F < 0$ 时养殖功能明显好转; $\Delta R_F > 0$ 时养殖功能明显受损。

1.3.2 健康风险评价

(1) 膳食暴露评估^[5-6,14]

2010 年 WHO/FAO 食品添加剂联合专家委员会(JECFA)第 72/73 次会议撤销了铅和无机砷的暂定每周耐受量(PTWI)(分别为 $25 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$ 和 $15 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$), 提出 Pb 的基于成人心血管效应收缩压升高的值(CED) $1.2 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw} \cdot \text{d})^{-1}$ 和按增加 0.5% 的肺癌发病率确定的无机 As 基准剂量下限(BMDL_{0.5}) $3.0 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw} \cdot \text{d})^{-1}$ 进行暴露评估(暴露边界比 MOE 法); 将 Cd 的 PTWI 改为暂定每月耐受量(PTMI), 降低为每月 $25 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$; 鱼贝类食品则沿用 2006 年第 67 次会议确认的甲基汞 PTWI 值 $1.6 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$ 。

Pb 的暴露边界比为 $\text{MOE}_{\text{成人}} = \frac{1.2 \times \text{Bw}}{C \times \text{Ir}}$; 无机 As

的为 $\text{MOE}_{\text{成人}} = \frac{3.0 \times \text{Bw}}{C \times \text{Ir}}$ 。当 $\text{MOE} > 1$ 时摄入风险较低, 当 $\text{MOE} > 100$ 时不存在暴露风险。

Cd 的月摄入量为 $E_M = 30 \times C \times \frac{\text{Ir}}{\text{Bw}}$; Hg 的周摄入

量为 $E_W = 7 \times C \times \frac{\text{Ir}}{\text{Bw}}$ 。 E_W/PTWI (或 E_M/PTMI) ≥ 1 时

风险较高, < 1 时风险较低, 且该比值越小风险越低。式中: E_M 代表测定污染物的月膳食暴露量, 是以单位体重表示的目标人群每月摄入的重金属污染物的质量($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$); E_W 代表测定污染物的周膳食暴露量, 是以单位体重表示的目标人群每周摄入的重金属污染物的质量($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$); C 代表贝类体内重金属污染物的含量, 可用 $C_{\text{加权}}$ 表示, $C_{\text{加权}} = \sum_{i=1}^n (C_i \times F_i)$ ($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)^[15]; C_i 为 i 品种贝类中重金属污染物浓度($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$); F_i 为膳食中 i 品种贝类占总贝类摄入量的比例; Ir 代表目标人群的每日消费贝类的质量($\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$); Bw 代表目标人群的体重(kg), 成年人取值 60 kg。

(2) 非致癌风险评价

针对膳食摄入途径, 采用美国环保局(US EPA)推荐的健康风险评价模型, 计算贝类体内重金属污染物对人体产生的非致癌风险, 具体公式如下^[15-17]:

单一污染物日暴露量的公式为

$$\text{ADD} = \sum_{i=1}^n \frac{C_i \times F_i \times \text{Ir} \times \text{EF} \times \text{ED} \times 10^{-3}}{\text{Bw} \times \text{AT}}$$

式中: ADD 为污染物日暴露量($\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$); EF 为贝类膳食暴露的频率($\text{d} \cdot \text{a}^{-1}$), 多取值 365; ED 为膳食暴露的时间(a), 一般取值 70; 10^{-3} 为单位换算系数; AT 为目标人群平均寿命(d), 取值 $365 \times 70 = 25\,550$ 。则该公式可简化为

$$\text{ADD} = \sum_{i=1}^n \frac{C_i \times F_i \times \text{Ir} \times 10^{-3}}{\text{Bw}} = \frac{C_{\text{加权}} \times \text{Ir} \times 10^{-3}}{\text{Bw}}。$$

m 种污染物日暴露量的公式为 $\text{ADD} =$

$$\frac{\sum_{j=1}^m (\sum_{i=1}^n C_{ij} \times F_i) \times \text{Ir} \times \text{EF} \times \text{ED} \times 10^{-3}}{\text{Bw} \times \text{AT}}, \text{同理, 可简化为}$$

$$\text{ADD} = \frac{\sum_{j=1}^m C_{j\text{加权}} \times \text{Ir} \times 10^{-3}}{\text{Bw}}。$$

非致癌风险的公式为 $R_n = \text{ADD}/\text{RfD}$, 式中: RfD 为污染物的经口参考剂量($\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$)。若 $R_n \leq 1$, 表明贝类产品中重金属污染物尚未对人体造成健

康风险; $R_n>1$,表明有很大可能性对人体健康产生影响; $R_n>10$,表明已经对人体健康造成威胁,存在慢性毒性。

(3)致癌风险评价

致癌风险的公式为 $R_c = ADD \times OSF$, 式中: OSF 为污染物的经口致癌斜率因子($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$) $^{-1}$ 。若 $R_c \leq 1 \times 10^{-6}$, 表示贝类产品中重金属污染物不会对人体健康造成致癌风险; $1 \times 10^{-6} < R_c \leq 1 \times 10^{-4}$, 表明风险程度处于人体可接受范围内; $R_c > 1 \times 10^{-4}$, 表明可能存在引发癌症的风险。将 7 种重金属的 RfD 和 OSF 列于表 1 中。

所有生物样品中重金属含量以湿重计($\mu g \cdot g^{-1}$), 图形采用 Origin 9.0(或 Excel 2010)及 Sufer 8.0 制作。

2 结果与分析 (Results and analysis)

2.1 贝类体内重金属污染物含量

东山湾养殖贝类体内 Cu、Pb、Zn、Cd、Cr、Hg 和 As 的含量范围分别在 $1.02 \sim 37.6 \mu g \cdot g^{-1}$ (均值 $9.69 \mu g \cdot g^{-1}$)、 $0.10 \sim 0.37 \mu g \cdot g^{-1}$ (均值 $0.19 \mu g \cdot g^{-1}$)、 $8.46 \sim 184 \mu g \cdot g^{-1}$ (均值 $43.5 \mu g \cdot g^{-1}$)、 $0.044 \sim 2.94 \mu g \cdot g^{-1}$ (均值 $0.65 \mu g \cdot g^{-1}$)、 $0.097 \sim 0.53 \mu g \cdot g^{-1}$ (均值 $0.21 \mu g \cdot g^{-1}$)、 $0.004 \sim 0.021 \mu g \cdot g^{-1}$ (均值 $0.010 \mu g \cdot g^{-1}$) 和 $1.03 \sim 2.45 \mu g \cdot g^{-1}$ (均值 $1.69 \mu g \cdot g^{-1}$)。不同贝类体内重金属含量的变异系数范围在 36.8 ~ 176 之间, 种间差异明显; 同种贝类体内不同重金属污染物含量的变异系数在 157 ~ 213 之间, 表明贝类对污染物

的累积和代谢能力与贝类品种和污染物类型有关且差异显著。总体而言, 贝类对污染物的富集能力呈 $Zn > Cu > As > Cd > Cr/Pb > Hg$ 的趋势, 华贵栉孔扇贝对 Cd、牡蛎对 Zn 和 Cu 具有明显的选择性吸收, 含量分别高出其余贝类品种的 4.16 ~ 65.8 倍、5.11 ~ 20.1 倍和 4.33 ~ 35.9 倍。

2.2 污染状况分析

如图 2(a)所示, 按照海洋生物质量第一类标准 (GB 18421—2001)^[18], 东山湾 6 种养殖贝类体内重金属单因子污染指数均值顺序依次为 $Hg < Cr < Cu < As < Pb < Zn < Cd$, 仅 Hg 含量均符合第一类海洋生物质量标准, Cu、Pb、Zn、Cd、Cr 和 As 的超标率分别为 16.7%、83.3%、33.3%、33.3%、16.7% 和 100%。其中, 牡蛎 Zn 含量超过海洋生物质量第三类标准, 牡蛎 Cu 含量和扇贝 Cd 含量符合第三类标准, 其余超标因子均符合第二类标准限量要求。

比较 6 种养殖贝类的综合污染状况: 金属指数 MPI 范围在 0.25 ~ 1.16 之间 (均值 0.60), 污染程度为菲律宾蛤仔 < 巴非蛤 < 翡翠贻贝 < 鲍 < 华贵栉孔扇贝 < 牡蛎 (表 2); 单因子污染指数均值范围在 0.60 ~ 3.43 之间 (均值 1.51), 顺序为菲律宾蛤仔 < 巴非蛤 < 翡翠贻贝 < 鲍 < 牡蛎 < 华贵栉孔扇贝 (图 2(b)); 内梅罗综合指数 P 值范围在 0.93 ~ 10.7 之间 (均值 3.72), 除华贵栉孔扇贝和牡蛎污染程度为重度污染外, 其余贝类污染程度均为无污染 ~ 轻度污染, 顺序为鲍 < 翡翠贻贝 < 巴非蛤 < 菲律宾蛤仔 < 牡蛎 < 华贵栉孔扇贝 (图 2(b))。

表 1 水产品中重金属经口摄入的致癌斜率因子及参考剂量
Table 1 Oral slope factor of heavy metals in aquatic products by ingestion way and reference dose

	无机砷(As_i) Inorganic As (As_i)	Cd	Cu	Cr(VI)	Pb	甲基汞 MeHg	Zn	资料来源 Origin
经口参考剂量(RfD)/($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$) Reference dose (RfD)/($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$)	3×10^{-4}	1×10^{-3}	/	3×10^{-3}	/	1×10^{-4}	0.3	
致癌物类别 Carcinogenicity classification	A	B1	D	经口: D Oral: D	B2	C	D	IRIS
经口致癌斜率因子/($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$) $^{-1}$ Oral slope factor (OSF) /($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$) $^{-1}$	1.5	/	/	/	/	/	/	

注: IRIS 为美国综合风险信息系统; 致癌物类别 A 为已知的人体致癌物; B1 为很可能的人体致癌物, 人体致癌证据有限; B2 为可能的人体致癌物, 动物致癌证据充分; C 为可能的人体致癌物, 动物致癌证据不足; D 为非人体致癌物。
Note: IRIS stands for Integrated Risk Information System; Carcinogenicity classification A is known human carcinogen; B1 is probable human carcinogen based on limited evidence of carcinogenicity in humans; B2 is probable human carcinogen based on sufficient evidence of carcinogenicity in animals; C is possible human carcinogen; D is not classifiable as to human carcinogenicity.

根据食品中污染物限量标准 (GB 2762—2017)^[19],若甲基汞以总汞含量计,无机砷以总砷含量的 10% 计^[7,20–21],按 $S_i < 0.2$ 时为安全,未受污染, $0.2 \leq S_i \leq 0.6$ 时为轻污染, $0.6 < S_i < 1.0$ 为中污染, $S_i > 1.0$ 为重污染^[7]进行评价,除华贵栉孔扇贝 Cd 含

量超标(超标 0.47 倍),污染指数为重污染外,6 种养殖贝类 Hg 含量均处于安全范围内,Pb、Cr 和无机砷的污染指数处于未受污染~轻污染水平(图 2(a))。总体而言,东山湾养殖贝类受到一定程度的重金属污染,但污染水平不高。

表 2 东山湾养殖贝类体内重金属含量及限量标准
Table 2 Concentrations and guidelines of heavy metals in cultured shellfishes in Dongshan Bay

		Cu	Pb	Zn	Cd	Cr	Hg	As	MPI
		$/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	$/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	$/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	$/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	$/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	$/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	$/(\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$	
养殖品种 Shellfish species	鲍 <i>Haliotis</i> sp.	9.14	0.11	11.6	0.18	0.18	0.012	1.03	0.46
	华贵栉孔扇贝 <i>Chlamys nobilis</i>	1.86	0.37	30.1	2.94	0.53	0.021	2.45	1.08
	牡蛎 <i>Saccostrea</i> sp.	37.6	0.25	184	0.57	0.12	0.011	2.13	1.16
	巴非蛤 <i>Paphia</i> sp.	1.47	0.16	10.9	0.091	0.17	0.004	1.26	0.30
	菲律宾蛤仔 <i>Ruditapes philippinarum</i>	1.02	0.10	8.46	0.044	0.097	0.007	2.13	0.25
	翡翠贻贝 <i>Perna viridis</i>	7.06	0.14	16.0	0.069	0.16	0.006	1.11	0.38
均值 Average		9.69	0.19	43.5	0.65	0.21	0.010	1.69	0.60
限量标准值 Limit standard	第一类海洋生物质量标准 ^[18] The primary standard category of marine biological quality ^[18]	10	0.1	20	0.2	0.5	0.05	1.0	/
	第二类海洋生物质量标准 ^[18] The secondary standard category of marine biological quality ^[18]	25	2	50	2	2.0	0.10	5.0	/
	第三类海洋生物质量标准 ^[18] The tertiary standard category of marine biological quality ^[18]	50		100					
	(牡蛎 <i>Ostrea</i> 100)		6	(牡蛎 <i>Ostrea</i> 500)	5	6.0	0.30	8.0	/
	食品中污染物限量 ^[19]	/	1.5	/	2.0	2.0	0.5 (MeHg)	0.5 (As _i)	/
	The limit of pollutant in food ^[19]								

注：MPI 表示金属污染指数。
Note: MPI is metal pollution index.

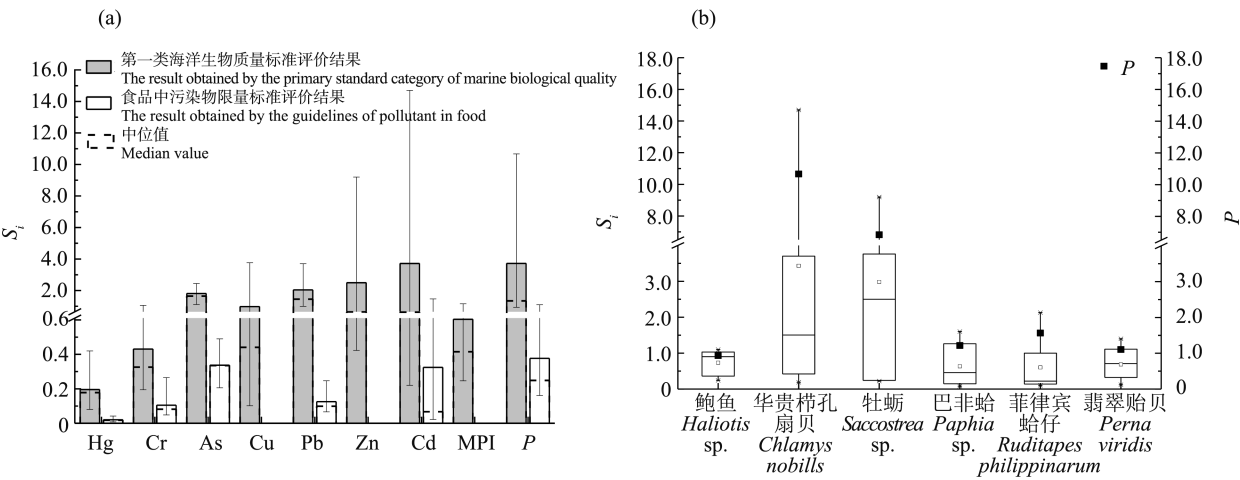


图 2 东山湾养殖贝类单因子污染指数评价结果

注： S_i 表示单因子污染指数， P 表示内梅罗综合污染指数。

Fig. 2 The single factor polluted index of cultured shellfishes in Dongshan Bay
Note: S_i is single factor contamination index; P is Nemerow composite pollution index.

2.3 健康风险分析

(1) 膳食暴露评估

贝类作为常见的经济水产品,是人们膳食的重要组成部分,也是人体暴露于污染物(特别是重金属污染物)的重要途径,由于 Cu、Zn 是人体必须的微量元素,不作为污染物指标,Cr 作为生命过程的必需元素,仅在过量摄入时对组织器官产生毒性^[22-23],此处不对这3种元素进行暴露评估。

福建省人均每天食用水产品 60.1~81.2 g^[24],漳州市海水养殖贝类产量约占水产品总产量的 48%,则人均贝类消费量约 39.0 g·d⁻¹(以高值计),鲍、贻贝、扇贝、蛤和牡蛎约占贝类产量的 1.56%、2.70%、0.45%、19.5%和 60.9%^[10],鲍、贻贝、扇贝、蛤和牡蛎人均日消费水平约为 0.61、1.05、0.18、7.60 和 23.8 g(合计 33.2 g·d⁻¹),Pb、Cd、Hg 和总砷加权浓度分别为 0.22、0.44、0.010 和 1.98 μg·g⁻¹。由此可知,东山湾 6 种养殖贝类导致的 Pb 暴露边界比(MOE)值为 9.99;无机砷(按总砷 10%计)MOE 值为 27.4,膳食暴露风险处于较低水平(MOE>1)。Cd 的月摄入量 E_M 为 7.39 μg·(kg bw)⁻¹,占世界贸易组织(WTO)规定的暂定每月耐受量(PTMI)的 29.5%;Hg 的周摄入量 E_w 为 0.037 μg·(kg bw)⁻¹,占 WTO 规定的暂定每周耐受量(PTWI)的 2.34%,摄入风险较低。

(2) 非致癌风险

按贝类体内重金属加权浓度及人均消费水平计算,膳食摄入时总非致癌风险 R_n 为 0.94,风险水平小于 1,尚未对人体造成健康风险,其中无机砷、Cd、Cr、Hg 和 Zn 的贡献率分别为 39.0%、26.3%、2.51%、5.70%和 26.5%,As、Cd 和 Zn 是主要的风险元素。如图 3 所示,东山湾养殖贝类多种重金属联合的非致癌风险排序为牡蛎>蛤>翡翠贻贝>华贵栉孔扇贝>鲍。其中,食用牡蛎和蛤的重金属暴露量之和,对贝类膳食摄入时总非致癌风险贡献率高达 95.3%,这主要是因为牡蛎和蛤的消费水平较高,二者占所选 6 种贝类膳食比例的 97.4%,而华贵栉孔扇贝含 Cd 量虽然高于其他贝类品种,但由于人均日消费水平较低,对健康风险的贡献很小。

(3) 致癌风险

东山湾 5 种贝类膳食摄入导致的总致癌风险为 1.65×10^{-4} ,其中,牡蛎风险指数最高,为 1.27×10^{-4} (贡献率达 77.0%),应适当减少膳食摄入的频率;其余蛤、翡翠贻贝、鲍和华贵栉孔扇贝风险指数依次为 3.22×10^{-5} 、 2.91×10^{-6} 、 1.57×10^{-6} 和 1.10×10^{-6} ,

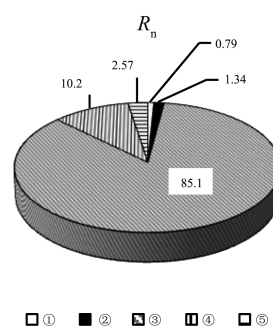


图3 东山湾养殖贝类膳食摄入的非致癌风险评价

注: R_n 表示非致癌风险;①表示鲍(*Haliotis* sp.);②表示华贵栉孔扇贝(*Chlamys nobilis*);③表示牡蛎(*Saccostrea* sp.);④表示蛤;⑤表示翡翠贻贝(*Perna viridis*)。

Fig. 3 The noncarcinogenic risk for ingestion of cultured shellfishes of Dongshan Bay

Note: R_n is the noncarcinogenic risk; ① is *Haliotis* sp.; ② is *Chlamys nobilis*; ③ is *Saccostrea* sp.; ④ is clam; ⑤ is *Perna viridis*.

在可接受范围内。

贝类体内无机砷占总砷含量的比例与采用的检测方法、贝类品种、产地和环境污染程度等有关^[25-27],按总砷含量 10% 的比例进行无机砷污染评价可能过高预估了风险水平。如 Krishnakumar 等^[26]认为贝类和有鳍的鱼类体内无机砷和总砷浓度之间没有相关性,且无机砷占比极低(<1.84%); Peshut 等^[27]也得出海洋贝类和鱼类体内无机砷含量多占总砷含量 0.5% 以下,仅少数品种占比能达到 1%~5% 的结论。随着砷形态分离技术的发展与成熟,液相色谱-原子荧光光谱法(LC-AFS)或液相色谱-电感耦合等离子体质谱法(LC-ICP-MS)的应用,可以更准确地测定和评价无机砷的健康风险。

3 讨论 (Discussion)

3.1 污染状况评价

目前,对贝类体内重金属污染物的研究多采用污染指数进行评价,但现行有效的各生物质量标准,对相同污染物的限量值并不一致,如针对海域使用功能和环境保护的“海洋生物质量标准(GB 18421—2001)^[18]”中的第一类标准限值适用于海洋渔业水域、海水养殖区等,Cd 的限量值为 0.2 μg·g⁻¹(海洋贝类),而基于污染物在可食用部分中允许的最大含量水平的“食品中污染物限量标准(GB 2762—2017)^[19]”中,Cd 的限量值为 2.0 μg·g⁻¹(双壳类等),二者相差 10 倍,这使得污染指数的计算结果

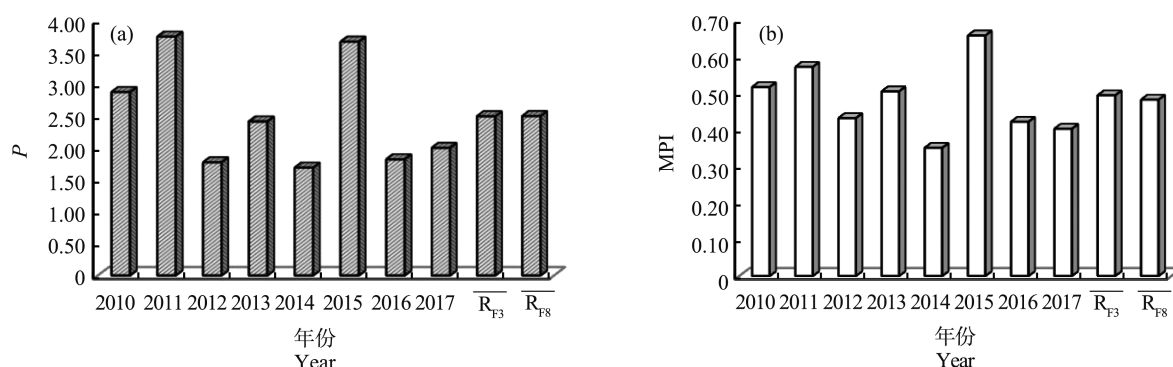


图4 2010—2017年东山湾僧帽牡蛎污染指数变化情况

注: $\overline{R}_{F3}$ 表示污染指数短期(3年)的年平均; $\overline{R}_{F8}$ 表示污染指数长期(8年)的年平均。

Fig. 4 The change of the pollution index of *Saccostrea cucullata* in Dongshan Bay from 2010 to 2017

Note: $\overline{R}_{F3}$ is the annual average of pollution index in short term for three years; $\overline{R}_{F8}$ is the annual average of pollution index in long term for eight years.

差异较大,应根据评价需要(环境质量或食品安全)合理选择相应的限量标准。

由表2可知,牡蛎对Cu、Zn和Cd的富集程度较高,华贵栉孔扇贝体内Cd和Cr含量也高于其余贝类品种,是这2种贝类的主要风险因子,而翡翠贻贝和蛤类的重金属含量相对较低,与汪靖等^[28]和姜元欣等^[29]的结论一致。贝类对重金属的选择性富集能力主要与贝类品种有关。程家丽等^[30]从2001—2015年发表文献中收集牡蛎、菲律宾蛤仔、缢蛏、贻贝、扇贝、毛蚶和螺等多种贝类数据进行统计分析,结果显示,我国东部-南部沿海贝类体内Cu、Pb、Cd、Cr、As和Hg含量分别为26.8、0.49、1.69、0.81、1.45和0.070 $\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ (均值),东山湾养殖贝类体内Cu、Pb、Cd、Cr和Hg含量略低于我国东部-南部沿海贝类的平均水平,As含量相差不大,质量状况较好。

当前,以古雷港区为重点,沿海线为主轴,东山湾为中心的沿海产业密集区正在形成,东山湾海洋环境面临更大的挑战,僧帽牡蛎是东山湾主要的养殖品种之一,也是综合污染程度较高的贝类品种,可以作为污染指示生物,通过监督僧帽牡蛎质量短期和长期的变化趋势,较直观地获知东山湾养殖环境重金属污染状况的动态变化。由于同一贝类品种体内重金属含量还受产地环境、季节、贝龄和繁殖状态等环境和生物因子的多重影响^[30],在计算养殖生物质量指数时,养殖品种、采集地点和采集季节应保持相对固定。由图4可知,2010—2017年间东山湾僧帽牡蛎的内梅罗综合指数(P)(按第一类海洋生物质量标准)和金属污染指数(MPI)均成波浪形变化趋势;2010—2017年间内梅罗综合指数(P)范围在1.69

~3.75之间,高值出现在2010年、2011年和2015年,其余年份相差不大,总体变异系数(CV)为33.7,若以近3年为短期,近8年为长期计算污染指数年平均 $\overline{R}_{F3}$ 和 $\overline{R}_{F8}$,则 $\Delta R_F = -0.10\%$;2010—2017年间MPI值范围在0.35~0.66之间,高值出现在2011年和2015年,总体变异系数(CV)为20.8,由年平均 $\overline{R}_{F3}$ 和 $\overline{R}_{F8}$ 计算得 $\Delta R_F = 2.40\%$ 。因此,尽管2015年污染指数较高,但按短期和长期平均值计算的 $|\Delta R_F|$ 仍小于5%,生物质量波动不大,重金属污染水平没有明显变化,养殖功能较稳定。

3.2 健康风险评价

海洋食用贝类重金属累积水平与人体健康密切相关,尽管东山湾6种主要养殖贝类受到一定程度重金属的污染,但Pb和无机砷膳食暴露的MOE值分别为9.99和27.4,Cd和Hg的摄入量分别占PTMI和PTWI的29.5%和2.34%,总非致癌风险水平也小于1,总致癌风险略大于 1×10^{-4} ,有一定的健康风险。风险主要来自牡蛎(对 R_n 和 R_c 的贡献率分别为85.1%和77.0%),主要风险元素为As和Cd,但牡蛎体内富Zn的特性可能对As和Cd的生物毒性有一定拮抗作用^[31-32],提高机体对As和Cd的耐受性。

由于饮食结构的多样性、膳食中污染物含量及相应消费数据的有限性,如何准确获得污染物的膳食暴露水平是健康风险评价的难题。目前评价时多采用贝类体内重金属浓度值平均法(王舟等^[33]),或将贝类人均日消费量全部假定为单一品种(程家丽等^[7])并在此基础上进行多品种的总食用风险叠加

(杜冰等^[34]),前者淡化了食用频率高的贝类品种对重金属膳食暴露的影响;后者则加大了食用频率少的贝类品种的影响,特别是后续进行多品种贝类总食用风险叠加时,贝类食用量随着贝类品种数的增加而同步递增,将过高预估其食用风险。姜元欣等^[29]则采用贝类消费问卷调查的方法,获得当地主要贝类消费品种及消费量的估算值,并认为该消费特征与贝类相应的价格和产量有关,较准确地对当地居民贝类的食用风险进行定量评估。为了对评估模型进一步简化,参考美国环保局(US EPA)的方法^[15],本文通过贝类各主要品种产量预估其占日常膳食的比例和人均日消费量,获得重金属污染物在多种贝类中的加权浓度,以便较准确地叠加计算多贝类品种多重金属污染物的健康风险。但由于所涉及贝类品种未包含所有可食用贝类(占东山湾海水养殖贝类的85.1%),无机砷含量采用总砷浓度的10%进行污染评价也存在一定的不确定性,加上未考虑不同重金属之间的拮抗或协同效应以及其他食物的膳食风险和其他暴露途径(呼吸、皮肤等)的贡献,为了确保食用安全性,应酌量降低贝类日常食用的频率。

综上所述,东山湾养殖贝类受到一定程度的重金属污染,按第一类海洋生物质量标准限值进行评价,Pb和As超标率较高,而按食品中污染物限量标准的限值要求,仅华贵栉孔扇贝Cd超标。总体而言,东山湾养殖贝类重金属含量略低于我国东部-南部沿海贝类的平均水平,污染水平不高,且2010—2017年期间污染状况没有明显变化。

通过叠加计算东山湾养殖贝类的健康风险,贝类体内Pb、Cd、Hg和总砷含量的膳食暴露风险均处于较低水平,总非致癌风险不高($R_n < 1$),总致癌风险 R_c 略大于 1×10^{-4} ,存在一定的健康风险。为了确保食用安全性,应当降低贝类日常食用的频率。

通讯作者简介:罗冬莲(1969—),女,本科,教授级高工,研究方向为海洋与渔业生态环境研究,发表学术论文近50余篇。

参考文献(References):

- [1] 彭加喜,徐向荣,刘金铃,等.红海湾海产品体内重金属水平及人体暴露风险评估[J].生态科学,2014,33(5): 825-831
- Peng J X, Xu X R, Liu J L, et al. Heavy metal levels in seafood from Honghai Bay and its human dietary exposure assessment [J]. Ecological Science, 2014, 33(5): 825-

- 831 (in Chinese)
- [2] 叶孙忠,罗冬莲,杨芳,等.东山湾渔业资源承载力评价指标体系构建及评估[J].海洋环境科学,2018,37(4): 493-498
- Ye S Z, Luo D L, Yang F, et al. Constructing and evaluating and assessment indices systems for fishery resources carrying capacity in Dongshan Bay [J]. Marine Environmental Science, 2018, 37(4): 493-498 (in Chinese)
- [3] 姜双城,林培梅,吴立峰,等.东山湾营养盐结构特征及影响因素分析[J].海洋开发与管理,2016,33(12): 39-48
- Jiang S C, Lin P M, Wu L F, et al. The structure characteristics and their influential factors of nutrients in Dongshan Bay [J]. Ocean Development and Management, 2016, 33(12): 39-48 (in Chinese)
- [4] 李磊,袁骥,平仙隐,等.东海沿岸海域牡蛎体内的重金属含量及其污染评价[J].海洋通报,2010,29(6): 678-684
- Li L, Yuan Q, Ping X Y, et al. Metal content and contamination assessment in *Ostrea* sp. from the East China Sea Coast [J]. Marine Science Bulletin, 2010, 29(6): 678-684 (in Chinese)
- [5] 蔡文华,苏祖俭,胡曙光,等.广东省居民重点食品中铅、镉的含量及暴露情况的评估[J].中国卫生检验杂志,2015,25(14): 2388-2392
- Cai W H, Su Z J, Hu S G, et al. Assessment of the content and exposure of lead and cadmium in the major food of Guangdong residents [J]. Chinese Journal of Health Laboratory Technology, 2015, 25(14): 2388-2392 (in Chinese)
- [6] 梅光明,张小军,钟志,等.浙江沿海海产品甲基汞污染调查及膳食风险评估[J].食品科学,2016,37(17): 207-211
- Mei G M, Zhang X J, Zhong Z, et al. Survey of methylmercury contamination in coastal seafoods in Zhejiang Province and potential dietary health risk assessment [J]. Food Science, 2016, 37(17): 207-211 (in Chinese)
- [7] 程家丽,马彦宁,刘婷婷,等.中国部分海产品重金属污染特征及健康风险评估[J].卫生研究,2017,46(1): 148-154
- Cheng J L, Ma Y N, Liu T T, et al. Accumulation and health risks of heavy metals in the seafood from China [J]. Journal of Hygiene Research, 2017, 46(1): 148-154 (in Chinese)
- [8] 廖文,吴烨,汪光,等.广州市居民食品砷摄入的健康风险评估[J].生态毒理学报,2018,13(5): 272-280
- Liao W, Wu Y, Wang G, et al. Human health risk assessment on residents' arsenic ingestion through food in

- Guangzhou [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2018, 13 (5): 272-280 (in Chinese)
- [9] 吴雪, 崔龙波. 海洋主要污染物对贝类及其环境的影响[J]. *渔业研究*, 2016, 38(2): 165-170
- Wu X, Cui L B. The effect of several main marine pollutants on shellfish aquaculture and the environment [J]. *Journal of Fisheries Research*, 2016, 38(2): 165-170 (in Chinese)
- [10] 漳州市统计局. 漳州统计年鉴 2017[R/OL]. (2017-09-27) [2019-01-07]. <http://tjj.zhangzhou.gov.cn/tjnj/2017/2017.html>.
- [11] 国家质量监督检验检疫总局. GB 17378.3—2007 海洋监测规范 第3部分: 样品采集、贮存与运输[S]. 北京: 中国标准出版社, 2008
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. GB 17378.3—2007 The specification for marine monitoring Part 3: Sample collection, storage and transportation [S]. Beijing: China Standards Press, 2008 (in Chinese)
- [12] 国家质量监督检验检疫总局. GB 17378.3—2007 海洋监测规范 第6部分: 生物体分析[S]. 北京: 中国标准出版社, 2008
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. GB 17378.3—2007 The specification for marine monitoring Part 6: Organism analysis [S]. Beijing: China Standards Press, 2008 (in Chinese)
- [13] 宋忠魁. 广西茅尾海2种养殖牡蛎重金属含量评价[J]. *安徽农业科学*, 2011, 39(1): 317-319
- Song Z K. Evaluation of heavy metals in two cultivated oysters from Maowei Gulf in Guangxi Province of China [J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2011, 39(1): 317-319 (in Chinese)
- [14] 吴永宁. 食品中化学危害暴露组与毒理学测试新技术中国技术路线图[J]. *科学通报*, 2013, 58(26): 2651-2656
- [15] US Environmental Protection Agency (US EPA). Risk assessment guidance for superfund volume I human health evaluation manual (part A). EPA/540/1-89/002. [R]. Washington DC: US EPA, 1989
- [16] 康国华, 张鹏岩, 李颜颜, 等. 黄河下游开封段引黄灌区小麦中重金属污染特征及健康风险评价[J]. *环境科学*, 2018, 39(8): 3917-3926
- Kang G H, Zhang P Y, Li Y Y, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of heavy metals in wheat of Kaifeng Yellow River irrigation area [J]. *Environment Science*, 2018, 39(8): 3917-3926 (in Chinese)
- [17] US EPA. Guidance for assessing chemical contaminant data for use in fish advisories, Volume 2: Risk assessment and fish consumption limits. Third edition. EPA 823-B-00-008. [R]. Washington DC: Environmental Protection Agency, 2000
- [18] 国家质量监督检验检疫总局. GB 18421—2001 海洋生物质量标准[S]. 北京: 中国标准出版社, 2001
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. GB 18421—2001 Marine biological quality [S]. Beijing: China Standards Press, 2001 (in Chinese)
- [19] 中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会, 国家食品药品监督管理总局. GB 2762—2017 食品安全国家标准 食品中污染物限量[S]. 北京: 中国标准出版社, 2017
- [20] 张文德. 海产品中砷的形态分析现状[J]. *中国食品卫生杂志*, 2007, 19(4): 345-350
- Zhang W D. Arsenic speciation and food safety in seafoods [J]. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2007, 19(4): 345-350 (in Chinese)
- [21] Buchet J P, Lison D, Ruggeri M, et al. Assessments of exposure to inorganic arsenic, a human carcinogen, due to the consumption of seafood [J]. *Archives of Toxicology*, 1996, 70(11): 773-778
- [22] 王增焕, 林钦, 王许诺, 等. 华南沿海牡蛎重金属含量特征及其风险评估[J]. *水产学报*, 2011, 35(2): 291-297
- Wang Z H, Lin Q, Wang X N, et al. The variation features of heavy metal contents in oyster samples from the coast of South China Sea and their safety assessment [J]. *Journal of Fisheries of China*, 2011, 35(2): 291-297 (in Chinese)
- [23] 张石天, 陈宇燕, 张贤艳, 等. 浙南沿海养殖贝类重金属 Cu、Cd、As、Pb 含量研究[J]. *湖北农业科学*, 2017, 56 (11): 2124-2127
- Zhang S T, Chen Y Y, Zhang X Y, et al. Study on the heavy metals Cu, Pb, Cd, As in shellfish from South Zhejiang [J]. *Hubei Agricultural Sciences*, 2017, 56 (11): 2124-2127 (in Chinese)
- [24] 中国统计出版社. 福建统计年鉴-2017[R/OL]. (2017-09-05) [2019-01-07]. <http://www.stats-fj.gov.cn/tongjinnianjian/dz2017/index-cn.html>.
- [25] Li P, Pan Y S, Fang Y, et al. Concentrations and health risks of inorganic arsenic and methylmercury in shellfish from typical coastal cities in China: A simultaneous analytical method study [J]. *Food Chemistry*, 2019, 278: 587-592
- [26] Krishnakumar P K, Qurban M A, Stiboller M, et al. Arsenic and arsenic species in shellfish and finfish from the western Arabian Gulf and consumer health risk assessment [J]. *Science of The Total Environment*, 2016, 566-

- 567: 1235-1244
- [27] Peshut P J, Morrison R J, Brooks B A. Arsenic speciation in marine fish and shellfish from American Samoa [J]. *Chemosphere*, 2008, 71(3): 484-492
- [28] 汪靖, 鄢灵君, 陈金发, 等. 福建沿海市售海产贝类重金属污染调查与健康风险分析[J]. *福建医科大学学报*, 2017, 51(2): 103-107
- Wang J, Yan L J, Chen J F, et al. Investigation on heavy metal pollution in marine shellfish sold in costal Fujian and its health risk [J]. *Journal of Fujian Medical University*, 2017, 51(2): 103-107 (in Chinese)
- [29] 姜元欣, 王伟涛, 陈德慰, 等. 广西北部湾水域贝类重金属污染分析与南宁市民贝类食用风险分析[J]. *食品工业科技*, 2013, 34(8): 52-55, 64
- Jiang Y X, Wang W T, Chen D W, et al. Heavy metals contamination of bivalve harvested from the north of Guangxi Gulf and potential health risk assessment for Nanning consumers [J]. *Science and Technology of Food Industry*, 2013, 34(8): 52-55, 64 (in Chinese)
- [30] 程家丽, 张贤辉, 卓勤, 等. 我国海洋食用贝类重金属污染特征及其健康风险[J]. *中国食品卫生杂志*, 2016, 28(2): 175-181
- Cheng J L, Zhang X H, Zhuo Q, et al. Accumulation and health risks of heavy metals in edible marine shellfishes from China [J]. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2016, 28(2): 175-181 (in Chinese)
- [31] 李凤琴, 徐娇, 刘飒娜. 生物利用率在食品污染物风险评估中的应用[J]. *中国食品卫生杂志*, 2011, 23(1): 17-22
- Li F Q, Xu J, Liu S N. Application of bioavailability in the risk assessment of food contaminants [J]. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2011, 23(1): 17-22 (in Chinese)
- [32] García-Barrera T, Gómez-Ariza J L, González-Fernández M, et al. Biological responses related to agonistic, antagonistic and synergistic interactions of chemical species [J]. *Analytical & Bioanalytical Chemistry*, 2012, 403: 2237-2253
- [33] 王舟, 黄薇, 潘柳波, 等. 深圳海域贝类铅和镉污染及其膳食暴露评估[J]. *华南预防医学*, 2017, 43(4): 322-326
- Wang Z, Huang W, Pan L B, et al. Lead and cadmium pollution and dietary exposure assessment of shellfish in Shenzhen [J]. *South China Journal of Preventive Medicine*, 2017, 43(4): 322-326 (in Chinese)
- [34] 杜冰, 孙鲁闽, 郝文博, 等. 台湾浅滩渔场不同水产品中重金属含量与暴露风险评价[J]. *农业环境科学学报*, 2016, 35(11): 2049-2058
- Du B, Sun L M, Hao W B, et al. Concentration and risk assessment of heavy metals in aquatic products collected from Taiwan shallow fishery [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2016, 35(11): 2049-2058 (in Chinese)
- ◆