

广东沿岸牡蛎体内总汞含量变动趋势及其健康风险评价

王学锋^{1,2,3}, 贾晓平^{1*}, 陈海刚¹, 蔡文贵¹, 马胜伟¹, 王增焕¹

(1.中国水产科学研究院南海水产研究所 广东省渔业生态环境重点实验室, 广州 510300; 2.广东海洋大学水产学院, 广东 湛江 524088; 3.上海海洋大学 海洋科学学院, 上海 201306)

摘要:为保障水产品质量安全和保护广东近岸海洋生态环境, 于2004—2010年对广东沿岸17个主要港湾的海水养殖牡蛎进行了采样, 运用原子荧光光谱法监测其总汞含量, 并结合1989—1993年的历史监测数据分析了广东近岸海域总体及粤东、珠江口和粤西三大主要海区牡蛎体内汞的时空分布规律, 应用单因子指数法和人体暴露风险系数法(HQ)评价了牡蛎体汞含量对人体暴露的健康风险。结果表明, 1989—2010年广东沿海牡蛎体内汞含量的检出率为100%, 变化范围为 $(0.080 \pm 0.114) \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (湿重, 下同)。单因子指数评价结果与风险系数(HQ)评价结果一致。上世纪80年代末(1989年)广东海域牡蛎体内汞含量处于污染水平, 健康风险系数较大($HQ = 3.39 \times 10^{-2}$); 90年代(1991—1993年)牡蛎体内汞含量逐年降低, 健康风险显著降低($HQ = 2.23 \times 10^{-2}$, $P < 0.05$); 2004年以来, 全海域的牡蛎体内汞含量一直稳定地维持在较低水平 [$(0.012 \pm 0.006) \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$]; 粤东、珠江口海域牡蛎体内含量稳定下降, 粤西海域降幅有所减小。2006—2010年, 人均摄取牡蛎软组织 $20 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$, 每年食用200 d, 食用20 a后, 在人均寿命70岁的时间内, 其健康风险系数HQ为 0.13×10^{-2} , 食用安全, 不存在潜在的危害性, 食用广东沿海牡蛎对人体日均总汞允许摄入量贡献率仅为0.13%。

关键词:重金属; 汞; 牡蛎; 健康风险评价; 广东沿海

中图分类号: X820.4 文献标志码: A 文章编号: 1672-2043(2011)12-2408-08

Spatial-temporal Trends and Health Risk Assessments of Total Mercury in the Oysters from Guangdong Coastal Bays, China

WANG Xue-feng^{1,2,3}, JIA Xiao-ping^{1*}, CHEN Hai-gang¹, CAI Wen-gui¹, MA Sheng-wei¹, WANG Zeng-huan¹

(1.South China Sea Fisheries Research Institute, CAFS; Key Laboratory of Fishery Ecology Environment, Guangzhou 510300, China; 2.Fisheries College, Guangdong Ocean University, Zhanjiang 524088, China; 3.College of Marine Science, Shanghai Ocean University, Shanghai 201306, China)

Abstract: To ensure the quality and safety of seafood products and provide clues for the protection of marine environments from Guangdong coastal waters, concentrations of total mercury in the soft tissues of oysters were collected from 17 important Guangdong estuaries/bays in March from 2004 to 2010 respectively, and were analyzed using atomic fluorescence spectrometry. Combined with the monitoring data on mercury level in oysters in these waters during 1989 to 1993, the paper analyzed the spatial and temporal trends of mercury content in oysters from Guangdong coastal waters. In addition, the Single Factor Index (SI) and Hazard Quotient (HQ) methods were used for the assessments of health risk of oysters to human. The results showed that all stations/samples were found within the limits for mercury standards as set by the FAO, though 100 percent of mercury in oysters was detected. The annual mercury content in oysters has decreased significantly since 1989, which averaged $(0.080 \pm 0.114) \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ wet weight in total. The results of health risk assessment indicated that both the SI and HQ well reflected the similar trends. The HQ was 3.39×10^{-2} in 1989, and decreased significantly to 2.23×10^{-2} during 1991 and 1993. And since 2004, the concentration of mercury has been well within a lower level [$(0.012 \pm 0.006) \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ wet weight], with the comparative slower decrease of

收稿日期: 2011-05-21

基金项目: 科技部科研院所社会公益研究专项(2005DIB3J021); 广东省渔业生态环境重点实验室开放基金(LFE-2010-001, LFE-2011-05)

作者简介: 王学锋(1980—)男, 河北广平人, 博士研究生, 讲师, 主要从事渔业生态与环境保护工作。E-mail: Xuefeng1999@126.com

* 通讯作者: 贾晓平 E-mail: JXP60@tom.com

mercury content in West Guangdong waters than the other two districts. And the HQ during 2006 and 2010 averaged 0.13×10^{-2} , which was far lower than the HQ threshold(1.0), therefore the mercury level of oysters from Guangdong coastal waters was safe and had no possible hazards to health.

Keywords: heavy metals; mercury; oyster; risk assessment; Guangdong coastal waters

2000年,人类活动释放到环境中的汞约2190^[1]。由于大量的煤炭燃烧及与汞有关的工业生产活动,中国的汞释放仍处于较高水平(约为全球汞排放总量的25%)^[2-3]。全球汞循环中,海洋在作为其源和汇方面都扮演着重要角色^[4]。一方面,海洋中的汞污染对水生生物产生不同程度的损害^[5-8];另一方面,生物体内的汞蓄积是海洋中汞循环的最重要特征^[9],并通过食物链传递、积累、放大而威胁到人类健康。汞对人类健康的影响主要包括中枢神经系统、心血管系统、生育能力等^[10-11]。部分食品的重金属污染是全球性问题,目前还没有经济上可行的方法加以去除^[12]。水产品质量安全关系国计民生,多年来水环境、水产品中汞含量及人体暴露的健康风险评价一直是渔业工作的重心和研究热点^[13-14]。

牡蛎是海洋环境中重金属时空分布特征的一个良好的指示生物^[15-18],广东海域牡蛎体内重金属的监测工作已开展多年,但关于牡蛎体内重金属汞含量的时空变化及其生态风险评估方面的报道甚少。作为近岸海洋生态环境质量评价及南海贻贝观察体系的重

要组成部分,南海水产研究所于1989—2010年对广东沿海主要港湾牡蛎体内汞含量进行了多年监测,本文在分析广东沿海牡蛎体内总汞含量的时间变化趋势与地理分布特点的基础上,初步评价其食用安全性,以期为保护重点渔业水域环境、促进贝类养殖业健康发展及风险管理等提供参考依据。

1 材料与方法

1.1 样品采集和预处理

1989—2010年广东沿海牡蛎采样点见图1,其中1989—1993年、2004—2005年为S1至S15的15个港湾(按编号依次为柘林湾、广澳湾、甲子港、碣石湾、长沙湾、考洲洋、亚铃湾、深圳湾、唐家湾、广海湾、镇海湾、马尾湾、博贺港、水东港、湛江港);自2006年起增加雷州湾(S16)和安埔港(S17)2个站点。按其区域分布划分为粤东海域(S1~S7)、珠江口海域(S8~S9)和粤西海域(S10~S17)。历年调查中以近江牡蛎(*Crassostrea rivularis*)为主,部分无法采集到近江牡蛎的海域,则采集太平洋牡蛎(*Crassostrea gigas*)。采样

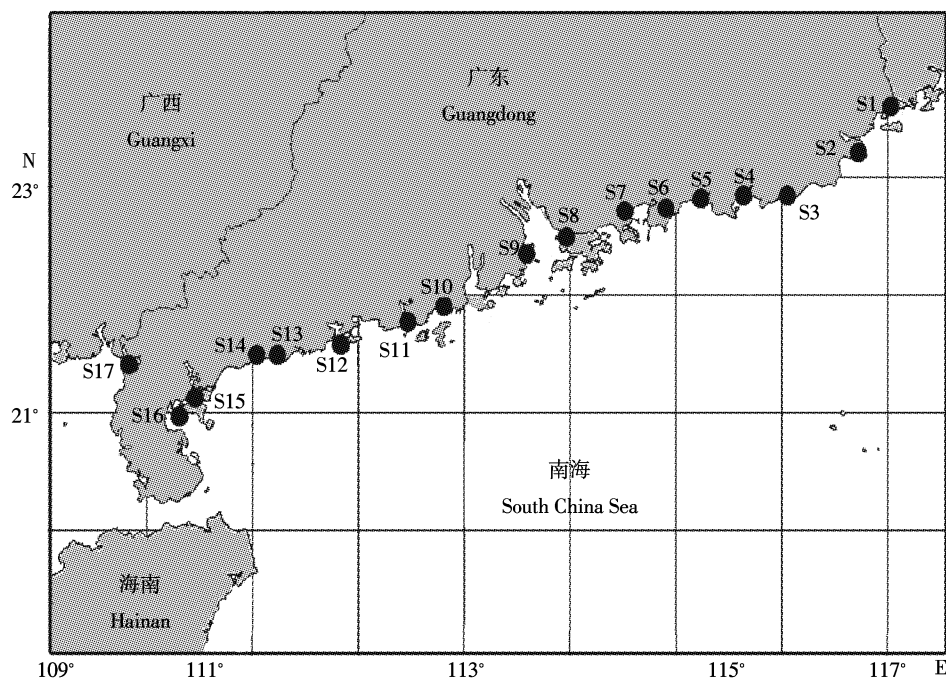


图1 广东沿海牡蛎采样站位示意图

Figure 1 Map of sampling stations for oysters from Guangdong coastal waters

年份每年3月在各采样点分别采样1次,采集3至4龄的牡蛎样品30只以上,所有样品均采自养殖区内成体产品,现场用海水冲洗外壳后取出软组织和体液,冰冻保存带回实验室。所有样品的采集、运输,保存均参照《海洋监测规范》^[19]进行。

1.2 样品处理与分析

样品前处理参照海洋监测规范及有关文献^[20]进行。于-20℃保存的样品在室温条件下自然解冻,用组织匀浆机制成匀浆;称取1.0g于聚四氟乙烯消化罐中,加入8mL浓HNO₃和1mL H₂O₂,轻微摇动后放入可控密闭融样罐内,然后置于微波消化炉内,170℃下消化20min,冷却至室温后取出消化罐,将样品转移至50mL烧杯中,加热至冒烟,冷却;用超纯水洗消化罐壁,转移至10mL容量瓶中,加入1mL 2%的盐酸,稀释至刻度,摇匀后静置,待测。

2004—2010年的样品采用双道原子荧光法,用AFS-2201a原子荧光光度计测定,1989—1993年的样品监测采用日本岛津AA-630-11型原子吸收分光光度计测定,所有仪器使用前均经标准物质(参考物质)校准和评价,分析测试结果符合方法要求(重复样、标准值误差均小于10%,两仪器的检测方法经同一样品检测,无显著差异, $P>0.05$),分析方法经国家质量认证。测定结果以湿重表示,每个样品测双样以均值表示。样品测定在农业部渔业环境及水产品质量监督检验测试中心完成。

1.3 汞污染及其暴露健康风险评价

欧共体(European Commission's Decision, EC, 1993)规定水产品中的汞含量 $\leq 0.5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$;中国《无公害食品 牡蛎》(NY 5154—2008)甲基汞湿重 $\leq 0.5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ^[21]。牡蛎体内汞污染采用单因子指数进行评价:

$$P_i = C_i / S_i$$

式中: P_i 为污染物*i*的单因子污染指数, C_i 为污染物*i*的实际浓度, S_i 为污染物*i*的评价标准。

由于受到贝类甲基汞测定方法的限制和汞在鱼、贝类体内多以甲基汞存在的事实,本文以总汞含量作为甲基汞含量估算的依据^[14],即假设检测到的汞全部为甲基汞(下同),选取 $0.5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 为标准。评价等级标准以污染指数 <0.2 视为正常背景水平, $0.2 \sim 0.6$ 为轻污染水平, $0.6 \sim 1.0$ 为污染水平,而 >1.0 为重污染水平^[22]。

牡蛎体汞含量的健康风险评价参考美国环保局 and 能源部 Oakridge National Laboratory (<http://www.ornl.gov/>)的方法^[23]。

(1) 日摄入量估计:

$$I = \frac{CW \times IR \times EF \times ED}{BW \times AT}$$

式中: I 为日总汞摄入量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$); CW 为牡蛎生物体内组织浓度($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$); IR 为日摄取生物量($\text{kg} \cdot \text{d}^{-1}$),根据唐洪磊等2006年对广东沿海居民膳食结构的调查^[24],假设人均日膳食20g贝类皆为牡蛎软组织,即 $IR=0.02 \text{ kg} \cdot \text{d}^{-1}$; EF 为暴露频率($200 \text{ d} \cdot \text{a}^{-1}$); ED 为暴露时限(20a); BW 为人均体重(kg),取60kg; AT 为无健康风险事件发生平均时限($365 \text{ d} \cdot \text{a}^{-1} \times 70 \text{ a}$)。

(2) 风险系数(hazard quotient, HQ)计算:

$$HQ = I / RfD$$

若 $HQ>1$ 则表明存在健康风险; $HQ<1$ 则表示无健康风险。

RfD 为甲基汞口服参考剂量(oral Reference Dose, RfD)。据FAO/WHO联合食品添加剂专家委员会(JECFA, 2010)规定的汞和甲基汞最大临时性周可承受摄入量PTW1值 $0.004 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,则日可承受汞总摄入量为 $5.71 \times 10^{-4} \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

2 结果与分析

2.1 牡蛎体内总汞含量分布及年际变化

1989—2010年广东沿海牡蛎体内汞含量监测数据表明,汞含量的变化范围为 $0.002 \sim 0.420 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (湿重,下同),均值为 $0.080 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,检出率为100%。图2为近20a间(1989—2010年)广东沿海牡蛎体内汞含量的频率分布直方图,汞含量低于 $0.040 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 的出现频次最高,累计为70.4%;高于 $0.20 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 的频次累积百分比为17.6%。应用Q-Q概率分布进行正态分布检验,发现其不具正态分布($P<0.01$)。

广东海域牡蛎体内汞含量的年际变动见图3。总体来看(图3-a),自1989年(0.326 ± 0.087) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 起,汞含量呈逐年下降趋势;1991—1993年3a间均值从 $0.250 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 降至 $0.202 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$;2004—2005年全海域均值(0.031 ± 0.055) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$;2006年以来,全海域的牡蛎体内汞含量一直稳定地维持在较低水平(0.011 ± 0.006) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

监测数据表明,广东沿海牡蛎体内汞含量的年际变动存在明显差异(图3)。从广东海域三大主要海区来看,粤东海域(图3-b)年际变动趋势与广东海域的总体变化一致,1989年牡蛎体汞含量最高(0.357 ± 0.020) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$;1991—1993年、2004—2005年、2006—2010年牡蛎体汞含量均值分别为(0.210 ± 0.048) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 、

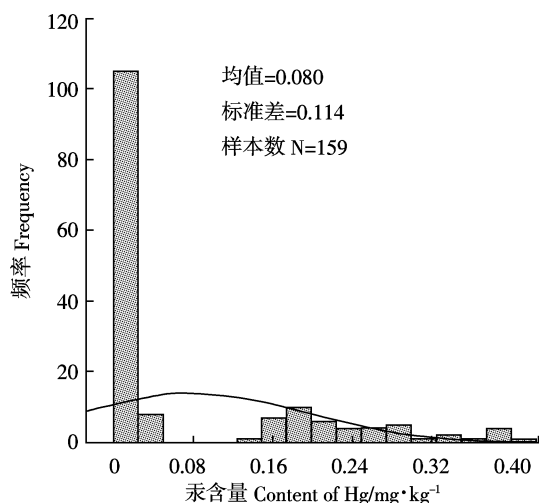


图 2 广东沿海牡蛎体内汞含量频率分布

Figure 2 Frequency distribution of mercury content in the oysters from Guangdong coastal waters

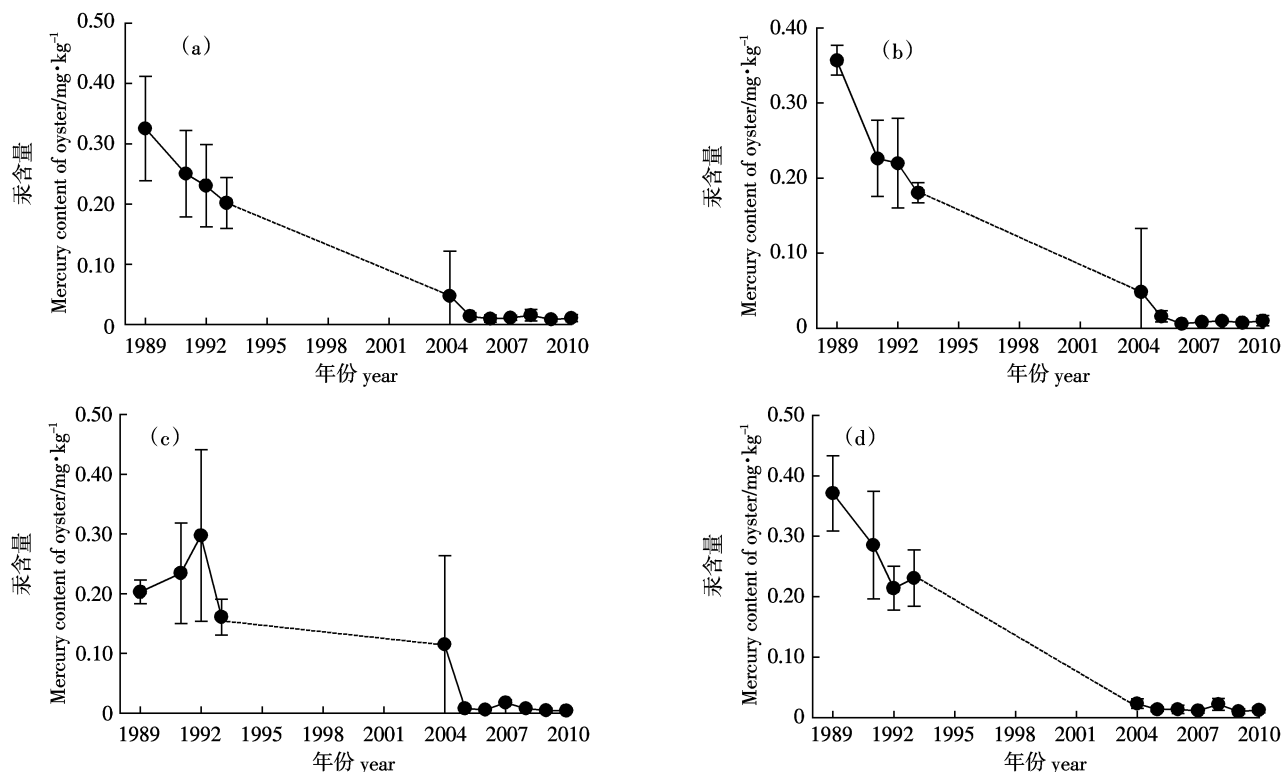
(0.032 ± 0.062) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, (0.008 ± 0.004) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。珠江口海域(图 3-c)牡蛎体内汞含量 1989 年为 $0.20 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 1991、1992 年分别升至历史次高值 $0.23 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和峰值 $0.30 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 此后逐年下降; 2004 年为 0.12

$\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 仍属广东沿海海域污染较重海区; 2005—2010 年显著降低, 为 (0.008 ± 0.005) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。粤西海域牡蛎体内汞含量逐年下降, 在 1989、1991 年汞含量高于粤东、珠江口海域, 分别为 0.371 、 $0.286 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; 1992 年 ($0.214 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 与粤东海域相当, 低于珠江口海域; 1993 年 ($0.231 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 显著高于粤东 ($0.181 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)、珠江口海域 ($0.161 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$); 2004 年汞含量 ($0.023 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 为广东沿海最低; 2005—2010 年牡蛎体内汞含量为 (0.014 ± 0.007) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 高于同期的粤东海域和珠江口, 表明粤西沿岸水体中牡蛎可利用的汞含量降幅小于粤东和珠江口海区。2007 年中国海洋质量公报^[25]中提及“粤西近岸沉积物受到汞的污染”, 牡蛎体汞含量在一定程度上反映了海洋环境受汞污染的动态变化。

2.2 牡蛎体总汞含量的空间分布

图 4 为广东沿岸三大海域在上世纪 80 年代末 (1989 年)、1991—1993 年、2004—2005 年及 2006—2010 年 4 个时间段牡蛎体汞含量的变动趋势。总体上, 粤东、粤西海域牡蛎体汞含量的变化规律大致相同。

上世纪 80 年代末生物体内的汞含量普遍偏高,



(a) 广东沿岸总体趋势 annual variations of Guangdong coastal waters; (b) 粤东区域 East Guangdong Sea Waters (EGd);

(c) 珠江口海域 Pearl River estuary (PRE); (d) 粤西海域 West Guangdong Waters (WGd)

图 3 1989—2010 年广东沿海牡蛎体内总汞浓度的时间分布特征

Figure 3 The temporal trends of total mercury concentration in oysters from Guangdong coastal waters

呈粤西>粤东>珠江口分布。1991—1993 年,珠江三角洲海域的牡蛎体内汞含量最高,为 $(0.245\pm0.100)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,粤西、粤东次之,分别为 (0.243 ± 0.065) 、 $(0.210\pm0.048)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,这很可能与该时期珠江三角洲地区经济发展迅猛,工农业入海含汞污染物总量升高有关^[26-27]。2004—2005 年,珠江口海域牡蛎体内汞含量仍偏高 $(0.062\pm0.106)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,总体呈珠江口>粤东 $(0.032\pm0.060)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ >粤西 $(0.018\pm0.008)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 的分布规律。2006—2010 年的监测数据表明,广东近岸三大主要海区牡蛎体内含量显著降低,总体上粤西 $(0.014\pm0.007)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ >珠江口 $(0.008\pm0.005)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ >粤东 $(0.008\pm0.004)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。

图 5 为广东沿岸 17 个站点 1989—2010 年牡蛎体内汞含量多年均值的空间分布情况。最高值为粤西的马尾湾[S12, $(0.122\pm0.156)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$],次高值为粤西的广海湾[S12, $(0.112\pm0.152)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$]和湛江港[S15, $(0.109\pm0.128)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$];其次为珠江口的唐家湾[S9, $(0.106\pm0.139)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$]、粤东的长沙湾[S5, $(0.097\pm0.126)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$]、广澳湾[S2, $(0.091\pm0.120)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$]。因

此,粤西海域和珠江口仍是今后牡蛎体内汞污染监测的重点。

2.3 牡蛎体汞含量的风险评价

对上世纪 80 年代、90 年代、2001—2005、2006—2010 年 4 个时间段进行单因子指数法进行评价(表 1),结果表明广东沿海牡蛎体内汞的单因子指数均小于 1,上世纪 80 年代末略呈污染,1991—1993 年为轻污染,2004—2010 年处于正常背景值范围。

以人均日摄取牡蛎软组织 20 g,每年内 200 d 食用,在食用 20 a 后,以人均寿命 70 岁估计牡蛎体汞含量对人体的健康风险。在上世纪 80 年代,牡蛎体汞含量对人体健康风险系数较大(HQ 为 3.39×10^{-2});自 90 年代后,广东沿海三大主要海域风险系数均较低,不存在风险。特别是 2006—2010 年,广东沿海牡蛎体汞含量的风险系数为 0.13×10^{-2} ,表明食用安全,不存在潜在的危害性。

3 讨论

广东沿岸牡蛎体内汞含量的监测结果表明,汞在

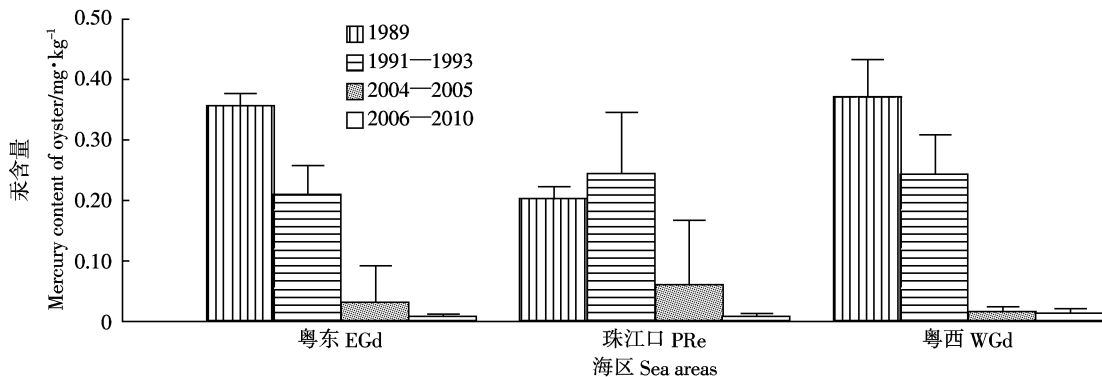


图 4 广东沿海不同海域牡蛎体内汞含量变动趋势

Figure 4 Spatial trends of total mercury concentration in oysters from Guangdong three main sea coastal areas

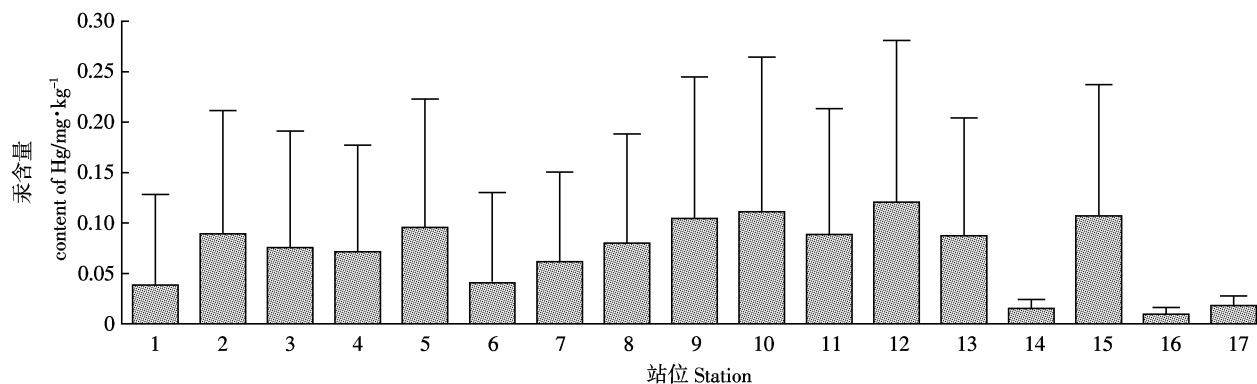


图 5 广东沿海各站位牡蛎体汞含量的空间分布

Figure 5 Spatial distributions in sampling stations from Guangdong coastal waters

表 1 广东沿海牡蛎体 Hg 污染评价单因子指数和风险系数

Table 1 Indices of Hg pollution and hazard quotient of oyster from Guangdong coastal waters

沿岸区	年代	单因子指数范围	单因子指数均值	污染状况	风险系数 $HQ/\times 10^{-2}$
粤东海区 EGd	1989	0.69~0.74	0.71	污染	3.26
	1991—1993	0.28~0.63	0.42	轻污染	1.92
	2004—2005	0.02~0.48	0.06	正常	0.29
	2006—2010	0.00~0.05	0.02	正常	0.08
珠江口海区 PRe	1989	0.38~0.43	0.41	轻污染	1.86
	1991—1993	0.32~0.80	0.49	轻污染	2.24
	2004—2005	0.02~0.44	0.12	正常	0.56
	2006—2010	0.01~0.04	0.02	正常	0.07
粤西海区 WGd	1989	0.56~0.84	0.70	污染	1.16
	1991—1993	0.31~0.77	0.49	轻污染	0.76
	2004—2005	0.02~0.06	0.04	正常	0.06
	2006—2010	0.01~0.07	0.03	正常	0.04
广东沿海 Gd total	1989	0.38~0.84	0.65	污染	3.39
	1991—1993	0.28~0.80	0.46	轻污染	2.23
	2004—2005	0.02~0.48	0.06	正常	0.17
	2006—2010	0.00~0.07	0.02	正常	0.13

广东海域牡蛎样品的检出率为 100%,近 20 a 来牡蛎体内的汞浓度逐年显著降低。上世纪 80 年代末(1989 年)牡蛎体内汞含量 $[(0.326\pm 0.087)\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}]$ 高于大致同时期的澳大利亚北部的监测结果^[28]($0.018\sim 0.125\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)。此后,汞含量呈逐年下降趋势,1991—1993 年 3 a 间均值从 $0.250\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 降至 $0.202\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,大致与同时期的美国沿岸(数据来自 USFDA)的监测结果($\text{ND}\sim 0.250\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)相当。

大量的实验研究和野外调查证明,双壳类对污染物的富集能力强,其体内的污染物累积量与环境水质、底质的污染浓度及暴露时间具有一定相关性,其体内的累积量能较好反映环境污染状况^[29]。因为当海域受到污染时,最先接触污染物质的就是潮间带生物,特别是无回避能力的定居性贝类品种,暴污时间长,易将有害物质富集于体内^[30]。陈海刚等研究近江牡蛎对 Hg 的富集时发现,其在体内的富集作用非常明显,积累阶段生物富集系数高达 2 435.6,远高于对 Pb、Cd 的富集;与此同时,当污染胁迫解除后,其对汞的释放速率也较大,表明近江牡蛎能较好地指示海洋环境中汞含量的变化^[31]。美国环保局的资料显示,近岸海域的重金属含量总体上呈陆—海方向,随海水盐度、pH 值升高及 COD 的降低而减少;而汞含量与水体中的有机物相关程度较铜、锌、铅、铬都弱,仅高于砷^[32],影响海水中汞分布的因素较多,主要包括大气

沉降、陆源污染物及沿岸径流、水动力条件、季节变化等。开展贝类生物体内的汞含量监测,是对海水、沉积物汞含量监测的重要补充,有助于了解汞对贝类等生物的有效浓度及其生物地化循环机制。

食用水产品而被动摄入汞是人体甲基汞暴露的主要途径,鱼类等海产品中 70%~90%的汞以甲基汞存在^[14,33],在牡蛎体汞含量对人体暴露风险评价时,作者选用了严格的标准:一是在选择评价汞暴露风险时,将牡蛎体内总汞含量全部作为甲基汞考虑;二是假设人均摄取牡蛎软组织 $20\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,每年中 200 d 食用,评价在食用 20 a 后的健康风险,以明确广东沿海居民日膳食中牡蛎的食用安全问题。仅就食用牡蛎而言,牡蛎体的汞含量对人体健康不存在风险,表明广东沿海牡蛎体汞含量远低于人体消费标准,这与其他学者的结论相一致^[26]。同时考虑到水产品在我国膳食结构中并不占主要比例,即使是水产品消耗量较多的广东省沿海各市,牡蛎等海洋贝类在其膳食结构中人均每日食用量也平均低于 $20\text{g}^{[24]}$,贝类日总摄食量为 $10.5\sim 26.8\text{g}$,以 6~17 岁和 60 岁以上两个年龄组最高(分别为 $26.8,24.5\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)。因此,广东沿海牡蛎体内汞含量处于安全食用范围内,在我国膳食构成中不构成食用风险。需指出的是,人体汞暴露的风险不仅仅来自水产品膳食,还包括如职业暴露、其他食物(如蔬菜、食用油、大米、肉类、蛋类等)。因此,人体汞暴露

的健康风险总体评价应综合多种暴露途径的共同作用^[23],本文仅就食用牡蛎的健康风险进行评估,为进一步深入研究人体汞暴露风险评价提供参考依据。

目前,根据汞污染事件的环境流行病学调查结果,推荐人的安全摄汞量为日平均 $30 \mu\text{g}$ ^[34]。本文选用 FAO/WHO 联合食品添加剂专家委员会规定的汞和甲基汞最大临时性周可承受摄入量 PTW1 值 $0.004 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 的标准进行评价,可以进一步明确食用牡蛎对人体总允许摄入汞量的贡献率大小,结果表明 2006—2010 年食用广东沿海牡蛎对人体日均总汞允许摄入限量的贡献率仅为 0.13%。

随着经济的快速发展和人民生活水平的不断提高,民众食品安全与环境保护意识不断增强,而沿海工业的不断发展,汞在化学工业、仪表工业、电器行业、冶金工业等方面依旧应用广泛,且海洋汞污染相当大比例来自大气沉降。在全球禁汞限汞不断加强的大趋势下,无论从海洋环境监测和保护,还是水产品质量安全来讲,继续进行以牡蛎及其他双壳类为指示生物的“贻贝观察”意义重大。

4 结论

通过 2004—2010 年对广东沿海 17 个主要港湾的牡蛎进行采样分析,并结合历史数据,分析了广东沿海牡蛎体内汞含量的时空变化规律及对人体健康的潜在风险评价。总体上,广东沿海牡蛎体汞含量呈逐年下降趋势,单因子指数评价结果为:1989 年为污染,1991—1993 年轻污染,2004—2010 年处于正常范围内。单纯就居民日膳食结构来讲,食用牡蛎 $20 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$,每年食用 200 d,连续食用 20 a,在人均寿命 70 年的时间段对人体健康不存在风险。2006—2010 年食用广东沿海牡蛎对人体日均总汞允许摄入限量的贡献率仅为 0.13%。

鉴于影响牡蛎体汞含量的影响因素多样,如季节变化、牡蛎生长期、沉积物与水体中汞的转化通量及水-气界面交换等,今后需综合考虑,以进一步细化牡蛎作为海洋环境汞污染指示生物的作用,提高其实际应用价值。

参考文献:

- [1] Pacyna E G, Pacyna J M, Steenhuisen F, et al. Global anthropogenic mercury emission inventory for 2000 [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, 40(2):4048–4063.
- [2] Quan J, Zhang X, Shim S G. Estimation of vegetative mercury emissions in China[J]. *Journal of Environmental Science*, 2008, 20(9):1070–1074.

- [3] Pacyna E G, Pacyna J M. Global emission of mercury from anthropogenic sources in 1995[J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2002, 137(1):149–165.
- [4] Laurier F J G, Mason R P, Gill G A, et al. Mercury distributions in the North Pacific Ocean—20 years of observations[J]. *Marine Chemistry*, 2004, 90(1–4):3–19.
- [5] Parks N. From land to sea: Tracing mercury's transit to coastal environments[J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, 43(15):5553.
- [6] 马桂云, 张振华, 唐婉莹. 重金属对鱼类污染的研究进展[J]. *江苏环境科技*, 2003, 16(2):38–40.
MA Gui-yun, ZHANG Zheng-hua, TANG Wan-ying. Study progress of fish pollution by heavy metals[J]. *Jiangsu Environmental Science and Technology*, 2003, 16(2):38–40.
- [7] 沈鑫绿, 沈新强, 邵留, 等. 汞对水生动物的危害及机理[J]. *水利渔业*, 2005, 25(4):105–107.
SHEN Ang-lü, SHEN Xin-qiang, SHAO Liu, et al. Studies on the harm and mechanism of Hg in aquatic animal[J]. *Reservoir Fisheries*, 2005, 25(4):105–107.
- [8] 王学锋, 陈海刚, 蔡文贵, 等. 汞离子胁迫对红鳍笛鲷抗氧化酶及乙酰胆碱酯酶活性的影响[J]. *水产学报*, 2010, 34(12):1829–1836.
WANG Xue-feng, CHEN Hai-gang, CAI Wen-gui, et al. Effects of mercury exposure on the antioxidant enzymes and acetylcholinesterase activities in the young crimson snapper (*Lutjanus erythropterus*) [J]. *Journal of Fisheries of China*, 2010, 34(12):1829–1836.
- [9] Fitzgerald W F, Lamborg C H, Hammerschmidt C R. Marine biogeochemical cycling of mercury[J]. *Chem Rev*, 2007, 107(2):641–662.
- [10] 王丽, 贾光. 甲基汞的发育毒性及其研究进展[J]. *卫生研究*, 2005, 34(5):633–635.
WANG Li, JIA Guang. Progress in development toxicity of methylmercury[J]. *Journal of Hygiene Research*, 2005, 34(5):633–635.
- [11] 叶光勇, 吕时铭. 甲基汞对发育中胚胎及胎儿的毒性作用研究进展[J]. *国际妇产科学杂志*, 2008, 35(3):168–171.
YE Guang-yong, LÜ Shi-ming. Progresses on the toxicity of methylmercury on human fetus[J]. *J Int Obstet Gynecol*, 2008, 35(3):168–171.
- [12] 傅群, 黄珂, 甘居利. 环境激素与水产品质量安全[J]. *南方水产*, 2005, 1(4):65–69.
FU Qun, HUANG Ke, GAN Ju-li. Environmental hormon affecting the security of aquatic products[J]. *South China Fisheries Science*, 2005, 1(4):65–69.
- [13] Canuel R, de Grosbois S B, Atikessé L, et al. New evidence on variations of human body burden of methylmercury from fish consumption[J]. *Environ Health Persp*, 2006, 114(2):302–306.
- [14] 李秀珠. 福建省海洋养殖贝类的总汞含量及风险评价[J]. *生态学杂志*, 2009, 28(1):58–63.
LI Xiu-zhu. Total mercury content in seawater—cultured shellfish in Fujian Province and its health risk assessment [J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2009, 28(1):58–63.
- [15] Apeti D A, Robinson L, Johnson E. Relationships between heavy metal concentrations in the American Oyster (*Crassostrea virginica*) and metal levels in the water column and sediment in Apalachicola Bay, Florida[J]. *American Journal of Environmental Sciences*, 2005, 1(3):179–

- 186.
- [16] 陆超华, 谢文造, 周国君. 近江牡蛎作为海洋重金属 Cu 污染监测生物的研究[J]. 海洋环境科学, 1998, 17(2):17-23.
LU Chao-hua, XIE Wen-zao, ZHOU Guo-jun. Study on *Crassostrea rivularis* as a biomonitor for copper pollution in sea water[J]. *Marine Environmental Science*, 1998, 17(2):17-23.
- [17] 陆超华. 近江牡蛎作为重金属污染生物指示种的初步研究[J]. 台湾海峡, 1994, 13(1):14-20.
LU Chao-hua. Oyster *Ostrea rivularis* as an indicator of heavy metals pollution[J]. *Journal of Oceanography in Taiwan Strait*, 1994, 13(1):14-20.
- [18] de Astudillo L R, Yen I C, Bekele I. Heavy metals in sediments, mussels and oysters from Trinidad and Venezuela[J]. *Int J Trop Biol*, 2005, 53(suppl 1):41-53.
- [19] 国家海洋局. GB 17378—1998 海洋监测规范[S]. 北京: 中国标准出版社, 1998.
State Oceanic Administration of China. GB 17378—1998 Specification of oceanographic survey[S]. Beijing: Standards Press of China, 1998.
- [20] 陈海刚, 贾晓平, 林 钦, 等. 混合暴露条件下近江牡蛎对重金属的积累与释放特征[J]. 应用生态学报, 2008, 19(4):922-927.
CHEN Hai-gang, JIA Xiao-ping, LIN Qin, et al. Accumulation and release characteristics of heavy metals in *Crassostrea rivularis* under mixed exposure[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2008, 19(4):922-927.
- [21] 中华人民共和国农业部. NY 5154—2008 无公害食品 牡蛎 [S]. 北京: 中国农业出版社, 2008.
Ministry of Agriculture of PRC. NY 5154—2008 Free-pollutant food Oyster[S]. Beijing: China Agriculture Press, 2008.
- [22] 贾晓平, 林 钦, 李纯厚, 等. 广东沿海牡蛎体 Pb 含量水平及时空变化趋势[J]. 水产学报, 2000, 24(6):527-532.
JIA Xiao-ping, LIN Qin, LI Chun-hou, et al. Concentrations and temporal-spatial variation trend of Pb in the oysters from Guangdong coastal waters[J]. *Journal of Fisheries of China*, 2000, 24(6):527-532.
- [23] Cheng W W L, Gobas F A P C. Assessment of human health risks of consumption of cadmium contaminated cultured oysters[J]. *Human & Ecological Risk Assessment*, 2007, 13(2):370-382.
- [24] 唐洪磊, 郭 英, 孟祥周, 等. 广东省沿海城市居民膳食结构及食物污染状况的调研——对持久性卤代烃和重金属的人体暴露水平评价[J]. 农业环境科学学报, 2009, 28(2):329-336.
TANG Hong-lei, GUO Ying, MENG Xiang-zhou, et al. Nutritional status in dietary intake and pollutants via food in coastal cities of Guangdong Province, China: Assessment of human exposure to persistent halogenated hydrocarbons and heavy metals[J]. *Journal of Agro-Environmental Science*, 2009, 28(2):329-336.
- [25] 国家海洋局. 2007 年中国海洋环境质量公报[R]. 北京: 国家海洋局, 2008.
State Oceanic Administration of China. Official gazette of the marine environment quality of PRC in 2007[R]. Beijing: State Oceanic Administration of China, 2008.
- [26] 张敬怀, 欧 强. 珠江口底栖生物重金属现状与评价[J]. 海洋环境科学, 2005, 24(2):50-52.
ZHANG Jing-huai, OU Qiang. Situation and assessment of heavy metal contents in benthons in Pearl River Estuary[J]. *Marine Environmental Science*, 2005, 24(2):50-52.
- [27] 黄小平, 田 磊, 彭 勃, 等. 珠江口海域环境污染研究进展[J]. 热带海洋学报, 2010, 29(1):1-7.
HUANG Xiao-ping, TIAN Lei, PENG Bo, et al. Environmental pollution in the Pearl River estuary: A review[J]. *Journal of Tropical Oceanography*, 2010, 29(1):1-7.
- [28] Peerzada N, Watson D, Guinea M. Mercury concentrations in Oysters from the coastline of northern territory, Australia[J]. *Bull Environ Contam Toxicol*, 1993, 50(1):158-163.
- [29] Rainbow P S. Trace metal concentrations in aquatic invertebrates: Why and so what[J]. *Environmental Pollution*, 2002, 120(3):497-507.
- [30] 薛 克, 韩家波, 庄人沁. 辽宁沿海贝类重金属含量调查[J]. 水产科学, 1994, 13(2):16-19.
XUE Ke, HAN Jia-bo, ZHUANG Ren-qin. Survey on the heavy metal concentration of shells in Liaoning coastal waters[J]. *Fisheries Science*, 1994, 13(2):16-19.
- [31] 陈海刚, 林 钦, 蔡文贵, 等. 3 种常见海洋贝类对重金属 Hg、Pb 和 Cd 的积累与释放特征比较[J]. 农业环境科学学报, 2008, 27(3):1163-1167.
CHEN Hai-gang, LIN Qin, CAI Wen-gui, et al. Comparison on the accumulation and elimination characteristic of Hg, Pb and Cd in three kinds of marine bivalve molluscs[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2008, 27(3):1163-1167.
- [32] 柯东胜. 广东近海水域重金属含量及其分布规律的研究[J]. 环境科学学报, 1991, 11(1):9-16.
KE Dong-sheng. Contents and distribution of heavy metals in the off-shore area along Guangdong Province[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 1991, 11(1):9-16.
- [33] Center for Disease Control and Prevention. Third National Report on human exposure to environmental chemicals[R]. Atlanta: National Center for Environmental Health, 2006.
- [34] 徐镜波. 环境毒理学[M]. 长春: 东北师范大学出版社, 2000:316.
XU Jing-bo. Environmental toxicology[M]. Changchun: Press of Northeast Normal University, 2000:316.