

谢文平, 马丽莎, 郑光明, 等. 珠江河网淡水鱼、虾和河蚬重金属污染特性及安全性评价[J]. 农业资源与环境学报, 2019, 36(6): 839-846.

XIE Wen-ping, MA Li-sha, ZHENG Guang-ming, et al. Pollution status and safety assessment of heavy metals in natural fish, shrimp, and shellfish from Pearl River waterway[J]. *Journal of Agricultural Resources and Environment*, 2019, 36(6): 839-846.

珠江河网淡水鱼、虾和河蚬重金属污染特性及安全性评价

谢文平, 马丽莎, 郑光明*, 刘书贵

(中国水产科学研究院珠江水产研究所, 农业部热带亚热带水产种质资源利用与养殖重点实验室, 农业部水产品质量安全风险评估实验室, 广州 510380)

摘要:为了全面评价珠江河网水产品重金属残留及食用安全风险,对鱼、虾和河蚬重金属的含量进行了检测分析,同时采用单因子污染指数(P_i)、综合污染指数(MPI)和健康风险评价模型对其污染程度、食用致癌和非致癌风险进行了评价。结果表明,水产品中重金属的含量(以鲜质量计)范围(均值)分别为Cr 0.031~0.264(0.131) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、Ni 0.077~0.742(0.170) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、Cu 0.199~22.575(2.318) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、Zn 3.422~36.764(7.939) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、As 0.112~4.192(0.339) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、Cd 0.004~1.269(0.095) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、Hg 0.012~0.048(0.026) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、Pb 0.028~0.253(0.096) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。鱼类和虾样品重金属残留均在安全值以内,但河蚬As和Cd残留略超标准值。水产品重金属污染程度评价结果表明,单因子污染指数排序为Cd>As>Pb>Hg>Cr>Zn>Cu。MPI值表明,不同水产品的污染程度依次为贝类(1.038)>虾类(0.353)>鱼类(0.101~0.292)。不同水产品重金属残留量的差异主要与它们不同的摄食习性、生活环境和对特定重金属的富集能力有关。健康风险评价结果表明,水产品复合重金属总目标危害系数(TTHQ)的高低顺序依次为河蚬>虾>鳊>鲢鱼>鲫鱼>翘嘴红鲂>鲈鱼>麦鲮>鲤鱼>餐条>罗非鱼>鲮鱼>广东鲂>鳊鱼>草鱼>赤眼鳟>鳙鱼。复合重金属TTHQ大于1,其中As的贡献比例最高,平均贡献率为51.7%。研究表明,当地居民若长期食用河蚬存在一定致癌风险。

关键词:珠江河网;水产品;重金属;健康风险评价

中图分类号:X522

文献标志码:A

文章编号:2095-6819(2019)06-0839-08

doi: 10.13254/j.jare.2019.0187

Pollution status and safety assessment of heavy metals in natural fish, shrimp, and shellfish from Pearl River waterway

XIE Wen-ping, MA Li-sha, ZHENG Guang-ming*, LIU Shu-gui

(Pearl River Fisheries Research Institute, Chinese Academy of Fishery Sciences, Laboratory of Seafood Quality and Security Evaluation of Ministry of Agriculture, Guangzhou 510380, China)

Abstract: In order to comprehensively evaluate residual, ecological, and edible health risks of natural aquatic products caused by heavy metals in the Pearl River waterway, the concentrations of heavy metals in fish, shrimp, and shellfish were determined. The extent of pollution carcinogenic and non-carcinogenic risks of aquatic products were evaluated by single factor pollution index (P_i), comprehensive pollution index (MPI), and various health risk assessment models. The results showed the following concentration ranges (means) of heavy metals in aquatic products in fresh weight: Cr 0.031~0.264(0.131) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, Ni 0.077~0.742(0.170) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, Cu 0.199~22.575(2.318) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, Zn 3.422~36.764(7.939) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, As 0.112~4.192(0.339) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, Cd 0.004~1.269(0.095) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, Hg 0.012~0.048(0.026) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, Pb 0.028~0.253(0.096) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$. Compared with different aquatic products, the metal concentrations in fish and shrimp samples were within the quality safety limits, but the As and Cd concentrations of shellfish slightly exceeded the corresponding limits. The single factor pollution index of the extent of heavy metal pollution of aquatic products was in the order Cd>As>Pb>Hg>Cr>Zn>Cu. The MPI values showed that the degree of pollution of different aquatic products was shellfish(1.038)>shrimp(0.353)>fish(0.101~0.292). The heavy met-

收稿日期:2019-04-12 录用日期:2019-05-07

作者简介:谢文平(1971—),男,硕士,副研究员,主要研究方向为环境毒理。E-mail:xwp7118@163.com

*通信作者:郑光明 E-mail:zgmyl1964@163.com

基金项目:公益性行业(农业)科研专项(201503108)

Project supported: The Special Fund for Agro-scientific Research in the Public Interest(201503108)

al residues in different fishes were mainly attributed to their different feeding habits, living environment, and accumulation ability to specific heavy metals. In health risk assessment, the order of TTHQ (Total target hazard quotient) of aquatic products was as follows: shellfish>shrimps>Eleotridae>catfish>crucians>*Culter alburnus*>perch>mrigal carp>carp>sharpbelly>tilapia>silver carp>Gungdong bream>dace>grass carp>Barbel chub>bighead fish. The TTHQ of complex heavy metals was more than 1, and the contribution rate of As was the highest with an average contribution rate of 51.7%. Thus, there is a certain risk of carcinogenesis associated with edible shellfish.

Keywords: Pearl River Delta; aquatic products; heavy metal; health risk assessment

珠江三角洲位于广东省的东南部,地处南方亚热带区域,毗邻中国南海,雨量充沛,水资源丰富,河网水系纵横交错,是我国南方城市和人口最集中的地区之一。随着经济快速发展,工业化和城市化加速,重金属等有毒有害物质随生活、工农业废水直接或间接排放进入河流及水域,由于其在水环境中残留具有持久性,且不能被微生物降解^[1],在某些条件下(如水环境pH和氧化还原电位变化),能通过食物链在不同食物层级水生生物中累积^[2-3]。重金属污染一方面对水生生物造成直接毒害,同时也能通过人们对水产品的摄取,进入人体内造成现实和潜在健康风险^[4-5]。据研究,长期摄入含重金属污染水产品,能导致许多不良影响,如肾功能受损、生殖能力下降、肝损伤、皮肤癌和膀胱癌,甚至死亡^[6]。大量相关研究显示珠江三角洲地区水产品中存在不同程度的重金属残留,如梁辉等^[7]于2010—2014年采集广东省市售1326份水产品检测发现Pb超标率为0.15%,Cd超标率为5.35%;广东沿海近江牡蛎、珠江口鱼虾也都存在重金属超标现象^[8]。水产品中含有丰富的蛋白质、不饱和脂肪酸、维生素和微量元素,对膳食营养均衡起到了关键的作

用^[9-10]。随着人们生活水平的提高,水产品在我国食品消费中所占比例日益提高,我国已成为水产品消费大国^[11]。然而,随水环境污染的加重,水产品也成了环境污染吸附和富集的载体,水产品质量安全和养殖环境污染风险评估受到社会广泛的关注^[12]。但目前,珠江河网淡水鱼类、虾和河蚬重金属污染特征及其健康风险的研究尚鲜有报道,为此本研究以珠江河网淡水鱼类、虾和河蚬为研究对象,分析鱼类、虾和河蚬体内重金属的含量水平,并探讨重金属在不同水产品中的污染特征,评估当地居民食用水产品可能造成的健康风险,以期对珠江河网重金属污染防治、生态环境保护提供基础数据及科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区域和样品采集

珠江是我国第二大河,主要由西江、东江和北江三条支流组成。北江和东江在珠江三角洲交汇,形成了一条密集的水道,经8个出海口汇入南海。2016年1—5月,于21个地点进行了样品采集(见图1)。样品包括淡水鱼、虾和河蚬,采样点分为四个采集区域,分



图1 采样点

Figure 1 Sampling sites

别为上游采样区域(U1~U6)、中部采样区域(N1~N7)、东部河口区(S1~S4)和西部河口区(S5~S8),不同区域样品分别采集,鱼样取样量为4~6条鱼背部肌肉,虾为15尾、河蚬为30个,去壳后取可食部分,样品混匀后均质保存。具体各采样区域采集样品种类、性状和数量见表1。

1.2 仪器与试剂

仪器:Agilent 7500 电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS,美国安捷伦公司)。

试剂:浓硝酸(德国Merck公司),30%双氧水优级纯(德国Merck公司),多金属元素混合标准溶液(GNM-0083,国家标准物质网),鱼肌肉标准参考物质(ERM-BB422,国家标准物质网)。

1.3 样品的预处理

称取2 g(鲜质量)样品于四氟乙烯压力消解罐中,加入10 mL浓硝酸(65%)浸泡过夜,再加入2 mL H₂O₂(30%),盖紧不锈钢外罐,置于恒温干燥箱中,将温度设定在120℃后,保持4 h,消解完毕,在箱内自然冷却至室温。取出内罐沸水浴加热1 h左右,赶酸,后将消解液移至25 mL容量瓶中,用去离子水定容至刻度,摇匀待测。

1.4 分析与质量控制

样品分析根据USEPA(美国环保局)3051A和

200.8方法进行测定^[13-14]。质量保证和质量控制(QA/QC):每批样品进行试剂空白、样品重复和样品加标检测,结果显示,所有样品的相对标准偏差(RSD)均小于10%,样品回收率为80%~120%,Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Hg和Pb样品检出限分别为0.008 2、0.003 4、0.021、0.048、0.005 1、0.001 3、0.001 5 mg·kg⁻¹和0.003 3 mg·kg⁻¹。

1.5 重金属污染评价

水产品中重金属的单因子污染指数(P_i)用于评价水产品中单项重金属污染^[15-16],计算公式如下:

$$P_i = C_i / S_i \tag{1}$$

式中: C_i 为水产品重金属测定值的均值,mg·kg⁻¹; S_i 为水产品重金属限量标准,mg·kg⁻¹,参考《GB 2762—2017食品安全国家标准 食品中污染物限量》^[17]和文献[18], S_i 取值为Hg 0.3 mg·kg⁻¹、Cr 2 mg·kg⁻¹、Cu 50 mg·kg⁻¹、Zn 150 mg·kg⁻¹、Cd 0.1 mg·kg⁻¹、As 0.5 mg·kg⁻¹、Pb 0.5 mg·kg⁻¹;评价标准: $P_i < 0.2$ 为正常背景值水平; $0.2 \leq P_i < 0.6$ 为轻污染水平; $0.6 \leq P_i < 1.0$ 为中污染水平; $P_i \geq 1.0$ 为重污染水平^[11,19-20]。

采用重金属综合污染指数(MPI)比较了水产品重金属污染总量的差异^[21-22]。计算公式如下:

$$MPI = (C_1 \times C_2 \times C_3 \times \dots \times C_n)^{1/n} \tag{2}$$

式中: C_n 为第 n 种水产品中测得重金属的含量平均值。

表1 采集水产品种类和生物参数

Table 1 The species and parameters of aquatic samples collected from the Pearl River estuarine network

种类 Species	生物性状 Biological parameters		
	数量 Number	体长 Body length/cm	体质量 Body weight(FW)/g
餐条(<i>Hemiculter leucisculus</i>)	4~6	8~16	19~28
广东鲂(<i>Megalobrama hoffmanni</i>)	4~6	29~36	283~610
鲈鱼(<i>Lateolabrax japonicus</i>)	4~6	28~33	248~317
鲢鱼(<i>Cirrhinus molitorella</i>)	4~6	13~18	23~28
鳙鱼(<i>Aristichy nobilis</i>)	4~6	20~22	138~155
翘嘴红鲌(<i>Erythroculter ilishaeformis</i>)	4~6	22~26	327~388
鲢鱼(<i>Hypophthalmichthys molitrix</i>)	4~6	31~33	733~982
赤眼鲮(<i>Squaliobarbus curriculus</i>)	4~6	31~35	193~323
罗非鱼(<i>Oreochromis mossambicus</i>)	4~6	18~21	193~213
鲤鱼(<i>Cyprinus carpio</i>)	4~6	26~32	578~706
麦瑞加拉鲮鱼(<i>Cirrhinus mrigala</i>)	4~6	27~38	247~525
鳊(<i>Eleotris oxycephala</i>)	4~6	35~42	955~1227
草鱼(<i>Ctenopharyngodon idellus</i>)	4~6	35~38	800~850
鲶鱼(<i>Clarias fuscus</i>)	4~6	34~39	792~938
鲫鱼(<i>Carassius carpio</i>)	4~6	29~33	532~589
虾(<i>Macrobrachium nipponense</i>)	15	5~8	8.20~14.4
河蚬(<i>Corbicula fluminea</i>)	30	2~3	—

1.6 人体健康风险评估

分别采用USEPA使用的评价模型,对水产品非致癌^[23-24]和致癌风险^[25-26]进行评价。水产品非致癌风险以目标危害系数(THQ)为基础,对水产品摄入引起的非致癌有害影响的健康风险进行评估,其中较高的THQ反映出较高的长期非致癌影响概率,低于1的THQ值不反映任何明显的风险,当THQ值大于1时,暴露人群存在健康风险。计算公式为:

$$THQ = \frac{E_F \times E_D \times F_{IR} \times C}{R_{D0} \times W_{AB} \times T_A} \times 10^{-3} \quad (3)$$

式中: C 为水产品中重金属的浓度, $\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$; E_F 为暴露频率($365 \text{ d} \cdot \text{a}^{-1}$); E_D 为暴露时间(70 a); F_{IR} 为食物摄取率,广东省居民的水产品摄取率为 $70.8 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ (鲜质量)^[27]; W_{AB} 为人体平均体质量(60 kg); T_A 为平均暴露时间($E_D \times 365 \text{ d}$);根据USEPA 2000年的数据,Zn、Co、Cu、Ni、Mn、Pb、Cd、Cr、As、Hg的 R_{D0} 分别为0.3、0.04、0.000 3、0.12、0.02、0.004、0.001、1.5、0.000 3 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和0.000 1 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

复合重金属总目标危害系数 $TTHQ = \sum THQ$ 。

致癌风险评价公式为:

$$R_{ig}^c = [1 - \exp(-D_{ig} \times q_{ig})] / 70 \quad (4)$$

式中: R_{ig}^c 是通过食物摄入重金属致癌的年平均风险值, a^{-1} ; D_{ig} 为重金属经食入途径单位体质量日均最大暴露剂量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$; q_{ig} 为重金属摄入量致癌强度系数。Cd、As和Cr致癌强度系数的 q_{ig} 值分别为6.1、15、0.91^[28],平均预期寿命为70 a。

采用公式(5)计算重金属日平均最大暴露剂量(D_{ig})。

$$D_{ig} = I_{ad} \times C_i / 60 \quad (5)$$

式中: D_{ig} 为每单位体质量重金属通过摄食途径的最大日暴露剂量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$; I_{ad} 为广东省居民水产品日平均摄入量($70.8 \text{ g} \cdot \text{人}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$,鲜质量);60为人均体质量, kg 。

1.7 数据统计

使用Origin 6.0和Excel 2007进行数据统计分析。

2 结果与讨论

2.1 珠江三角洲河网水产品中重金属分布特征

珠江三角洲河网17种水产品(鱼类、虾和河蚬)样品检测结果(表2)显示,重金属的含量范围和均值,分别为Cr(0.031~0.264, 0.131)、Ni(0.077~0.742, 0.170)、Cu(0.199~22.575, 2.318)、Zn(3.422~36.764, 7.939)、As(0.112~4.192, 0.339)、Cd(0.004~1.269,

0.095)、Hg(0.012~0.048, 0.026)、Pb(0.028~0.253, 0.096) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (鲜质量)。Zn与Cu为鱼类必需元素,参与鱼体的新陈代谢过程,更易被鱼体主动吸收,在检测样品中残留量较高^[29],与鱼体本身残留和较强的吸收能力有关。Cr、Ni、As、Cd、Hg和Pb为非必需元素,不参与生理活动,进入体内能产生较强的毒性^[30],国内外对其有严格的安全限量标准^[31]。对鱼类、虾和河蚬重金属残留进行比较,根据《GB 2762—2017 食品安全国家标准 食品中污染物限量》,鱼类和虾样品中所测金属残留均在安全值以内,但河蚬样品中As和Cd略超限量值,为安全值的1.3倍和1.2倍。鱼类中重金属含量虽未超过水产品中有毒有害物质的限量,但As和Pb在所有鱼类样品中仍然是高残留,平均残留量分别为安全标准值的65.4%和20.2%。

目前,我国不同区域水产品中都存在不同程度的重金属超标,如北京市市售4种鱼类中存在Pb、Cd和As 3种重金属超标,超标率分别为14.6%、5.2%和10.4%^[11];台海浅滩渔场水产品Cd超标率为9.7%^[32],广西刁江野生鱼类As、Pb超标率分别为64.56%、5.06%^[3],钱塘江、赤水河、滦河等流域中的野生鱼类监测数据表明,Pb、Cr和Cd的污染程度较突出^[33-35],在本研究中珠江三角洲河网主要鱼类重金属超标率并不明显。

2.2 鱼类、虾及河蚬肌肉中重金属污染程度及比较

采用单因素污染指数法对样品中7种元素的污染程度进行评价(图2),64.4%~100%的样品 P_i 值均在正常背景值和轻度污染范围内。这表明珠江三角洲鱼类重金属污染相对较低。在被测样品中,Cr污染水平最低,只有一个样品残留浓度高于背景值。Cu、Zn、Hg的轻污染样品比例分别为6.78%、3.39%和4.24%,有轻微的微量污染。Pb的污染程度略高,轻度和中度污染样品的比例分别为22.90%和3.39%。Cd污染程度较高,中、重度污染样品比例为4.24%、5.90%。As污染最为严重,中度污染占23.73%,重度污染占11.86%。水产品重金属污染程度的单因子污染指数排序为 $\text{Cd} > \text{As} > \text{Pb} > \text{Hg} > \text{Cr} > \text{Zn} > \text{Cu}$ 。利用复合重金属污染指数(MPI)比较了水产品重金属污染的总体差异,如图2所示。MPI值表明,不同水产品的污染程度依次为河蚬(1.038)>虾(0.353)>鳢(0.292)>鲢鱼(0.195)>鲈鱼(0.177)>鲫鱼(0.170)>翘嘴红鲌(0.164)>鲤鱼(0.138)>鲮鱼(0.130)>鲢鱼(0.128)>麦鲮(0.126)>餐条(0.126)>草鱼(0.121)>鳊鱼(0.120)>赤眼鳟(0.116)>广东鲂(0.109)>罗非鱼(0.101)。分

表2 珠江三角洲河网不同水产品肌肉样品重金属平均浓度(mg·kg⁻¹,鲜质量)

Table 2 Average heavy metal concentrations in muscle of different aquatic products from Pearl River waterway (mg·kg⁻¹, fresh weight)

种类 Species	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Hg	Pb
餐条(<i>Hemiculter leucisculus</i>)	0.170±0.076	0.129±0.078	0.373±0.112	5.426±1.869	0.283±0.173	0.006±0.008	0.012±0.012	0.070±0.039
广东鲂(<i>Megalobrama hoffmanni</i>)	0.074±0.026	0.078±0.041	0.298±0.119	4.284±1.478	0.234±0.143	0.010±0.008	0.023±0.008	0.052±0.045
鲈鱼(<i>Lateolabrax japonicus</i>)	0.163±0.056	0.119±0.104	0.315±0.169	5.883±2.135	0.211±0.181	0.013±0.010	0.057±0.020	0.169±0.108
鲢鱼(<i>Cirrhinus molitorella</i>)	0.070±0.022	0.101±0.089	0.306±0.260	5.810±5.701	0.202±0.127	0.020±0.018	0.017±0.007	0.092±0.083
鳙鱼(<i>Aristichthys nobilis</i>)	0.136±0.055	0.117±0.064	0.491±0.273	5.379±1.796	0.127±0.065	0.003±0.001	0.021±0.005	0.126±0.123
翘嘴红鲌(<i>Erythroculter ilishaeformis</i>)	0.157±0.038	0.201±0.114	0.618±0.183	3.599±2.371	0.291±0.247	0.036±0.011	0.031±0.008	0.023±0.068
鲢鱼(<i>Hypophthalmichthys molitrix</i>)	0.106±0.054	0.082±0.022	0.339±0.099	4.145±1.494	0.223±0.151	0.009±0.007	0.024±0.022	0.123±0.075
赤眼鲮(<i>Squaliobarbus curriculus</i>)	0.080±0.036	0.096±0.059	0.295±0.105	4.258±1.123	0.167±0.125	0.013±0.007	0.025±0.016	0.062±0.040
罗非鱼(<i>Oreochromis mossambicus</i>)	0.079±0.029	0.112±0.076	0.284±0.182	6.711±4.219	0.245±0.149	0.004±0.001	0.022±0.010	0.030±0.017
鲤鱼(<i>Cyprinus carpio</i>)	0.124±0.065	0.068±0.016	0.444±0.174	7.300±2.892	0.268±0.208	0.013±0.019	0.024±0.015	0.059±0.062
麦瑞加拉鲮鱼(<i>Cirrhinus mrigala</i>)	0.099±0.022	0.096±0.012	0.440±0.089	5.302±1.048	0.295±0.148	0.005±0.004	0.026±0.003	0.076±0.016
鳊鱼(<i>Eleotris oxycephala</i>)	0.152±0.041	0.348±0.175	1.209±0.576	9.050±3.279	0.378±0.151	0.031±0.021	0.031±0.012	0.253±0.133
草鱼(<i>Ctenopharyngodon idellus</i>)	0.123±0.056	0.076±0.191	0.289±0.630	3.794±3.182	0.187±0.140	0.013±0.025	0.023±0.019	0.079±0.098
鲶鱼(<i>Clarias fuscus</i>)	0.160±0.061	0.139±0.080	0.538±0.230	9.507±3.062	0.376±0.144	0.017±0.004	0.048±0.019	0.060±0.109
鲫鱼(<i>Carassius carpio</i>)	0.086±0.038	0.211±0.114	0.447±0.183	6.773±2.371	0.420±0.247	0.013±0.011	0.024±0.008	0.096±0.068
虾(<i>Macrobrachium nipponense</i>)	0.168±0.093	0.208±0.125	10.539±3.784	11.580±3.545	0.487±0.217	0.206±0.331	0.012±0.006	0.047±0.022
河蚬(<i>Corbicula fluminea</i>)	0.284±0.151	0.703±0.255	22.175±8.225	36.160±16.501	1.365±0.837	1.209±1.277	0.023±0.009	0.222±0.108
平均值 Mean	0.131	0.170	2.318	7.939	0.339	0.095	0.026	0.096
最大值 Maximum values	0.264	0.742	22.575	36.764	4.192	1.269	0.048	0.253
最小值 Minimum values	0.031	0.077	0.199	3.422	0.112	0.004	0.012	0.028
评价标准 Evaluation criterion	2.0	—	50	—	0.5(鱼类) 1.0(贝类,甲壳类)	0.1(鱼类) 0.5(甲壳类) 1.0(贝类)	0.5	0.5(鱼类) 1.0(贝类)

注:评价标准为《GB 2762—2017 食品安全国家标准 食品中污染物限量》。

Note: Evaluation criterion is National Food Safety Standards: Limits of Contaminants in Foods(GB 2762—2017).

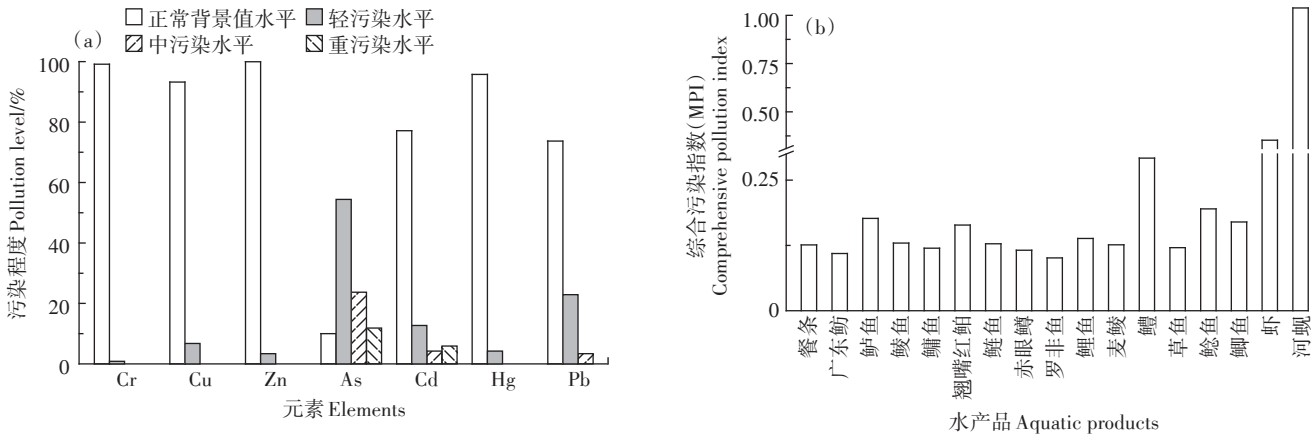


图2 重金属的单因子污染指数评价(a)和综合污染指数评价(b)

Figure 2 Evaluation of single factor pollution index(a) and comprehensive pollution index(b) of heavy metal

析珠江河网河蚬、虾和鱼类重金属残留量,MPI存在一定的差异,河蚬MPI明显高于虾和鱼类,据相关的研究证实水环境中重金属在沉积物中含量最高,依次为底栖生物、鱼类,最低为水体,河蚬为底栖滤食性动物,相对于鱼类,其对重金属有更高的富集能力^[36-37]。

鱼类重金属残留量的差异同时也与它们不同的摄食习性有关,食肉鱼类由于处于食物链的较高级别,比食草鱼类和杂食性鱼对重金属富集能力更强。鳊、鲶、鲈鱼主要是食肉动物,处于水生食物链的顶端,且生活在水体的中下层,具有较强的环境耐受

性,因此重金属含量较高,而罗非鱼为杂食性鱼类,草鱼为植食性鱼类,重金属残留量相对较低。

2.3 鱼、虾和河蚬重金属健康风险评价

当地居民通过摄入水产品暴露重金属的THQ评价如表3所示。单一重金属的THQ从高到低的顺序依次为As>Cd>Ni>Cu>Hg>Mn>Pb>Zn>Cr。除As外,食用水产品其他单个元素THQ大都低于1。贝类、虾和鱼类复合重金属TTHQ的高低顺序依次为河蚬>虾>鳢>鲢鱼>鲫鱼>翘嘴红鲌>鲈鱼>麦鲢>鲤鱼>餐条>罗非鱼>鲢鱼>广东鲂>鲮鱼>草鱼>赤眼鲮>鳊鱼。复合重金属TTHQ均大于1,其中As的贡献比例最高,平均贡献率为51.7%,其次为Cu,平均贡献率为24.06%,Hg贡献率为11.92%,说明As是主要风险元素。

采用USEPA健康风险评价方法对珠江三角洲主要水产品中致癌元素As、Cr、Cd进行分析,结果见图3。由图3可知,As($1.76 \times 10^{-4} \text{ a}^{-1}$)致癌风险最大,Cd($3.05 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$)次之,Cr($2.92 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$)最低;国际辐射防护委员会(ICRP)推荐的通过饮食途径最大可接受年风险水平为 $5 \times 10^{-5} \text{ a}^{-1}$,所测水产品中As已略超致癌风险值($5 \times 10^{-5} \text{ a}^{-1}$),其中,河蚬通过食物摄入As致癌的年平均风险值为 $3.41 \times 10^{-4} \text{ a}^{-1}$,说明食入河蚬相较其他水产品有较高致癌风险。

3 结论

(1)根据《GB 2762—2017 食品安全国家标准 食

品中污染物限量》,鱼类、虾样品中所测重金属残留均在安全值以内,但河蚬样品中As和Cd略超限量值,河蚬重金属浓度明显高于虾和鱼。重金属综合污染指数(MPI)结果显示,不同水产品的污染程度依次为河蚬(1.038)>虾类(0.353)>鳢(0.292)>鲢鱼(0.195)>鲈鱼(0.177)>鲫鱼(0.170)>翘嘴红鲌(0.164)>鲤鱼(0.138)>鲮鱼(0.130)>鲢鱼(0.128)>麦鲢(0.126)≈餐条(0.126)>草鱼(0.121)>鳊鱼(0.120)>赤眼鲮(0.116)>广东鲂(0.109)>罗非鱼(0.101)。不同水产品重金属残留量的差异主要与它们摄食习性、生活环境和富集能力有关。

(2)目标危害系数(THQ)评价结果显示,重金属

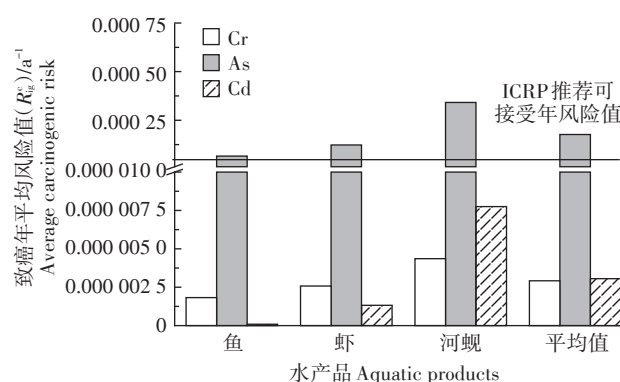


图3 重金属的致癌风险评价

Figure 3 Carcinogenic risk assessment of heavy metals in aquatic products

表3 珠江三角洲河网水产品重金属目标危害系数

Table 3 Target hazard quotients of heavy metals in aquatic products from Pearl River waterway

种类 Species	Cr/ $\times 10^{-3}$	Mn	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Hg	Pb	TTHQ
餐条(<i>Hemiculter leucisculus</i>)	0.144	0.045	0.082	0.118	0.023	1.316	0.008	0.167	0.024	1.886
广东鲂(<i>Megalobrama hoffmanni</i>)	0.062	0.025	0.049	0.094	0.018	1.088	0.014	0.321	0.018	1.700
鲈鱼(<i>Lateolabrax japonicus</i>)	0.138	0.024	0.075	0.100	0.025	0.981	0.018	0.795	0.059	2.163
鲮鱼(<i>Cirrhinus molitorella</i>)	0.059	0.039	0.064	0.097	0.025	0.940	0.028	0.237	0.032	1.617
鳊鱼(<i>Aristichy nobilis</i>)	0.115	0.048	0.074	0.155	0.023	0.591	0.004	0.293	0.044	1.405
翘嘴红鲌(<i>Erythroculter ilishaeformis</i>)	0.133	0.013	0.127	0.196	0.015	1.353	0.050	0.433	0.008	2.550
鲢鱼(<i>Hypophthalmichthys molitrix</i>)	0.090	0.051	0.052	0.107	0.017	1.037	0.013	0.335	0.043	1.803
赤眼鲮(<i>Squaliobarbus curriculus</i>)	0.068	0.019	0.061	0.093	0.018	0.777	0.018	0.349	0.022	1.441
罗非鱼(<i>Oreochromis mossambicus</i>)	0.067	0.025	0.071	0.090	0.028	1.140	0.006	0.307	0.010	1.761
鲤鱼(<i>Cyprinus carpio</i>)	0.105	0.023	0.043	0.141	0.031	1.247	0.018	0.335	0.021	1.925
麦瑞加拉鲮鱼(<i>Cirrhinus mrigala</i>)	0.084	0.030	0.061	0.139	0.022	1.372	0.007	0.363	0.027	2.092
鳢(<i>Eleotris oxycephala</i>)	0.128	0.224	0.220	0.383	0.038	1.758	0.043	0.433	0.088	3.491
草鱼(<i>Ctenopharyngodon idellus</i>)	0.104	0.015	0.048	0.092	0.016	0.870	0.018	0.321	0.028	1.538
鲢鱼(<i>Clarias fuscus</i>)	0.135	0.031	0.088	0.170	0.040	1.749	0.024	0.670	0.021	2.966
鲫鱼(<i>Carassius carpio</i>)	0.073	0.072	0.134	0.142	0.029	1.953	0.018	0.335	0.033	2.906
虾(<i>Macrobrachium nipponense</i>)	0.142	0.059	0.132	3.337	0.049	2.265	0.287	0.167	0.016	6.487
河蚬(<i>Corbicula fluminea</i>)	0.240	0.434	0.445	7.021	0.153	6.349	1.687	0.321	0.077	16.910

在水产品中产生的健康风险大小依次为 $As>Cd>Ni>Cu>Hg>Mn>Pb>Zn>Cr$ 。复合重金属总目标危害系数(TTHQ)结果表明,水产品健康危害风险大小依次为河蚬>虾>鳢>鲶鱼>鲫鱼>翘嘴红鲌>鲈鱼>麦鲮>鲤鱼>餐条>罗非鱼>鲢鱼>广东鲂>鳊鱼>草鱼>赤眼鳟>鳙鱼。当地居民若长期摄入河蚬和虾,暴露重金属的健康风险较大,As是主要风险元素。

参考文献:

- [1] 黄文,张玉龙,李海燕,等. 东江流域水环境中颗粒态和胶体态金属元素的分布和来源[J]. 环境科学学报, 2015, 35(1):101-107.
HUANG Wen, ZHANG Yu-long, LI Hai-yan, et al. Distribution and sources of heavy metals in colloidal and particulate matter in Dongjiang River basin[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, 35(1):101-107.
- [2] Saha N, Zaman M R. Evaluation of possible health risks of heavy metals by consumption of foodstuffs available in the central market of Rajshahi City, Bangladesh[J]. *Environmental Monitoring & Assessment*, 2013, 185(5):3867-3878.
- [3] 王俊能,马鹏程,张丽娟,等. 广西刁江野生鱼类重金属积累特征及其健康风险评价[J]. 环境科学, 2017, 38(6):2600-2606.
WANG Jun-neng, MA Peng-cheng, ZHANG Li-juan, et al. Accumulation characteristics and health risk assessment of heavy metals in wild fish species from Diaojiang River, Guangxi[J]. *Environmental Science*, 2017, 38(6):2600-2606.
- [4] Storelli M M. Potential human health risks from metals (Hg, Cd, and Pb) and polychlorinated biphenyls (PCBs) via seafood consumption: Estimation of target hazard quotients (THQs) and toxic equivalents (TEQs)[J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2008, 46(8):2782-2788.
- [5] 秦延文,韩超南,张雷,等. 湘江衡阳段重金属在水体、悬浮颗粒物及表层沉积物中的分布特征研究[J]. 环境科学学报, 2012, 32(11):2836-2844.
QIN Yan-wen, HAN Chao-nan, ZHANG Lei, et al. Distribution of heavy metals among surface water, suspended solids and surface sediments in Hengyang section of Xiangjiang River[J]. *Acta Sci Circum*, 2012, 32(11):2836-2844.
- [6] 李磊,王云龙,沈新强,等. 文蛤养殖水体中重金属Cu的安全限量值研究[J]. 生态毒理学报, 2012, 7(2):182-188.
LI Lei, WANG Yun-long, SHEN Xin-qiang, et al. Safety levels of Cu in *Meretrix meretrix* farming water[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2012, 7(2):182-188.
- [7] 梁辉,周少君,戴光伟,等. 2010—2014年广东省水产品中铅镉含量调查及评价[J]. 中国食品卫生杂志, 2017, 29(2):209-212.
LIANG Hui, ZHOU Shao-jun, DAI Guang-wei, et al. Investigation and evaluation of lead and cadmium in aquatic products in Guangdong Province from 2010 to 2014[J]. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2017, 29(2):209-212.
- [8] 魏泰莉,杨婉玲,赖子尼,等. 珠江口水域鱼虾类重金属残留的调查[J]. 中国水产科学, 2002, 9(2):172-176.
WEI Tai-li, YANG Wan-ling, LAI Zi-ni, et al. Residues of heavy metals in economic aquatic animal muscles in Pearl River estuary, South China[J]. *Journal of Fishery Sciences of China*, 2002, 9(2):172-176.
- [9] Karagas M R. Which fish should I eat? Perspectives influencing fish consumption choices[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2012, 120(6):790-798.
- [10] Sinha A K, Kumar V, Makkar H P S, et al. Non-starch polysaccharides and their role in fish nutrition: A review[J]. *Food Chemistry*, 2011, 127(4):1409-1426.
- [11] 刘平,周益奇,臧利杰. 北京农贸市场4种鱼类体内重金属污染调查[J]. 环境科学, 2011, 32(7):2062-2068.
LIU Ping, ZHOU Yi-qi, ZANG Li-jie. Investigation of heavy metal contamination in four kinds of fishes from the different farmer markets in Beijing[J]. *Environmental Science*, 2011, 32(7):2062-2068.
- [12] 王丽,陈凡,马千里,等. 东江惠州段鱼类重金属污染及健康风险评价[J]. 生态与农村环境学报, 2017, 33(1):70-76.
WANG Li, CHEN Fan, MA Qian-li, et al. Heavy metal pollution and health risk assessment of fish in Huizhou section of the Dongjiang River[J]. *Journal of Ecology & Rural Environment*, 2017, 33(1):70-76.
- [13] Link D D, Walter P J, Kingston H M. Development and validation of the new EPA microwave-assisted leach method 3051A[J]. *Environmental Science & Technology*, 1998, 32(22):3628-3632.
- [14] Long S E, Martin T D. Determination of trace elements in waters and wastes by inductively coupled plasma-mass spectrometry: Test method 200.8[R]. US Environmental Protection Agency, Office of Research and Development, Environmental Monitoring and Systems Laboratory, 1989.
- [15] 酃桂芬. 环境质量评价[M]. 北京:中国环境科学出版社, 1989.
LI Gui-fen. Environment quality appraisal[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1989.
- [16] Zhu F K, Qu L, Fan W X, et al. Study on heavy metal levels and its health risk assessment in some edible fishes from Nansi Lake, China[J]. *Environ Monit Assess*, 2015, 187(4):1-13.
- [17] 国家卫生和计划生育委员会,国家食品药品监督管理总局. 食品安全国家标准 食品中污染物限量 GB 2762—2017[S]. 北京:中国标准出版社, 2017.
State Health and Family Planning Commission, State Food and Drug Administration. National food safety standard: Contaminant limit in food GB 2762—2017[S]. Beijing: China Standards Press, 2017.
- [18] Anon G. Report on revised standard for metals in food. Appendix I-V [R]. Canberra:Common wealth Government Printers. 1979: 60-70.
- [19] 毕士川,于慧娟,蔡友琼,等. 重金属Cd在不同水产品中的含量及污染状况评价[J]. 环境科学与技术, 2009, 32(4):181-185.
BI Shi-chuan, YU Hui-juan, CAI You-qiong, et al. Content and pollution assessment of heavy metal Cd in different aquatic products[J]. *Environmental Science and Technology*, 2009, 32(4):181-185.
- [20] 刘洋,付强,高军,等. 江苏盐城地区水产品重金属含量与安全评价[J]. 环境科学, 2013, 34(10):4081-4089.
LIU Yang, FU Qiang, GAO Jun, et al. Assessment of heavy metals content and safety in aquatic products in Yancheng area, Jiangsu[J].

- Environmental Science*, 2013, 34 (10):4081-4089.
- [21] Usero J, González-Regalado E, Gracia I. Trace metals in the bivalve molluscs *Ruditapes decussatus* and *Ruditapes philippinarum* from the Atlantic coast of southern Spain[J]. *Environment International*, 1997, 23(3):291-298.
- [22] Yap C K, Ismail A, Tan S G. Background concentrations of Cd, Cu, Pb and Zn in the green-lipped mussel *Perna viridis* (Linnaeus) from Peninsular Malaysia[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2003, 46(8):1044-1048.
- [23] USEPA. Risk-based concentration table[R]. Washington D C: United States Environmental Protection Agency, 2000.
- [24] Yi Y, Yang Z, Zhang S. Ecological risk assessment of heavy metals in sediment and human health risk assessment of heavy metals in fishes in the middle and lower reaches of the Yangtze River basin[J]. *Environmental Pollution*, 2011, 159(10):2575-2585.
- [25] 葛奇伟, 徐永健, 葛君远. 象山港养殖区缢蛏和泥蚶的 Cu、Cd、Pb 含量及其健康风险评价[J]. 环境科学学报, 2012, 32(8):2042-2048.
- GE Qi-wei, XU Yong-jian, GE Jun-yuan. Levels and health risks of Cu, Cd, Pb in *Sinonovacula constricta* and *Tegillarca granosa* in Xiangshan Bay[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2012, 32(8):2042-2048.
- [26] 腾丽华. 宁波市饮用水中重金属铁锌铜健康风险评价[J]. 广东微量元素科学, 2007, 14(6):33-36.
- TENG Li-hua. Health risk assessment of Fe, Zn and Cu on drinking waters in Ningbo[J]. *Guangdong Trace Element Science*, 2007, 14(6):33-36.
- [27] 马文军, 邓峰, 许燕君, 等. 广东省居民膳食营养状况研究[J]. 华南预防医学, 2005, 31(1):1-5.
- MA Wen-jun, DENG Feng, XU Yan-jun, et al. Study on dietary nutritional status of residents in Guangdong Province[J]. *South China Journal of Preventive Medicine*, 2005, 31(1):1-5.
- [28] 高继军, 张力平, 黄圣彪, 等. 北京市饮用水源水重金属污染物健康风险的初步评价[J]. 环境科学, 2004, 25(2):47-50.
- GAO Ji-jun, ZHANG Li-ping, HUANG Sheng-biao, et al. Preliminary health risk assessment of heavy metals in drinking waters in Beijing[J]. *Environmental Science*, 2004, 25(2):47-50.
- [29] Sun P, Wang B. Accumulation and distribution of Zn, Cu and Pb in *Sesarm dehaani*[J]. *Marine Environmental Science*, 2002, 22(1):43-47.
- [30] Rudovica V, Bartkevics V. Chemical elements in the muscle tissues of European eel (*Anguilla anguilla*) from selected lakes in Latvia[J]. *Environ Monit Assess*, 2015, 187(10):1-9.
- [31] Farag A M, May T, Marty G D, et al. The effect of chronic chromium exposure on the health of Chinook salmon (*Oncorhynchus tshawytscha*)[J]. *Aquatic Toxicology*, 2006, 76(3/4):246-257.
- [32] 杜冰, 孙鲁闽, 郝文博, 等. 台海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 Bing, SUN Lu-min, HAO Wen-bo, 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.
- [33] 施沁璇, 孙博铎, 王 俊, 等. 钱塘江流域鱼肉中重金属含量特征及食用安全性评价[J]. 上海海洋大学学报, 2017, 26(4):536-545.
- SHI Qin-xuan, SUN Bo-yi, WANG Jun, et al. Study on heavy metal concentration and their food safety assessment in the muscle of fishes in Qiantang River[J]. *Journal of Shanghai Ocean University*, 2017, 26(4):536-545.
- [34] 蔡深文, 倪朝辉, 刘 斌, 等. 赤水河主要经济鱼类重金属含量及风险评价[J]. 淡水渔业, 2017, 47(3):105-112.
- CAI Shen-wen, NI Chao-hui, LIU Bin, et al. Concentration and risk assessment of heavy metals in the main economic fishes from Chishui River[J]. *Freshwater Fisheries*, 2017, 47(3):105-112.
- [35] 王瑞霖, 孙然好, 武大勇. 滦河流域鲫鱼体内重金属分布及风险评价[J]. 生态毒理学报, 2015, 10(6):229-237.
- WANG Rui-lin, SUN Ran-hao, WU Da-yong. Distribution and risk assessment of heavy metals in crucian carp (*Carassius auratus*) of Luan River[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2015, 10(6):229-237.
- [36] Luoma S N, Bryan G W. Trace metal bioavailability: Modeling chemical and biological interactions of sediment-bound zinc[M]//Jenne E A. Chemical modeling in aqueous systems. Washington D C: American Chemical Society, 1979:577-609.
- [37] Yi Y, Yang Z, Zhang S. Ecological risk assessment of heavy metals in sediment and human health risk assessment of heavy metals in fishes in the middle and lower reaches of the Yangtze River basin[J]. *Environmental Pollution*, 2011, 159(10):2575-2585.