

研究报告

我国海洋食用贝类重金属污染特征及其健康风险

程家丽¹,张贤辉²,卓勤¹,刘婷婷¹,唐阵武³

(1. 中国疾病预防控制中心营养与健康所,北京 100050; 2. 淮南市农业技术推广中心,安徽 淮南 232007; 3. 华北电力大学环境研究院,北京 102206)

摘要:目的 探讨我国海洋食用贝类重金属累积水平及人体健康风险。方法 基于已报道的数据,分析我国海洋食用贝类中 Cu、Pb、Cd、Cr、As 和 Hg 污染统计特征,采用美国国家环境保护局(US EPA)提出的靶器官危害系数(THQs)方法评估贝类重金属污染的人体健康风险。结果 我国海洋食用贝类中各重金属含量呈非正态分布。Pb、Cd、Cr、As 和 Hg 的平均含量均未超过食品中污染物限量。牡蛎、菲律宾蛤仔、缢蛏及贻贝 4 类典型食用贝类中,As、Cu 和 Cd 的含量均差异有统计学意义($P < 0.05$),牡蛎中 Cu 和 Cd 含量最高,缢蛏中 As 含量最高;4 类贝类中其他重金属含量均差异无统计学意义($P > 0.05$)。珠江口、福建沿海、长江口-浙江沿海、山东沿海、渤海湾海域食用贝类中 Cu、Pb、Cr、Hg 的人体健康风险较低,但山东沿海、渤海湾和福建沿海部分贝类中 Cd 以及福建海域部分贝类中 As 的风险超出了可接受水平;除山东沿海、渤海湾和福建沿海贝类重金属污染对儿童的风险值大于 1.0 外,其他海域贝类 6 种金属的总风险均可接受;Cd 和 As 是我国贝类重金属污染健康风险的主要贡献者。结论 我国海洋食用贝类中 Cu、Cd 和 Cr 含量存在超标现象,部分海域一些贝类 Cd 和 As 污染的健康风险超出了可接受水平。总体上,海洋贝类重金属污染不严重,但重金属复合污染的健康风险需引起重视。

关键词:海洋食用贝类;重金属;污染特征;人体健康风险

中图分类号:R155 文献标志码:A 文章编号:1004-8456(2016)02-0175-07

DOI:10.13590/j.cjfh.2016.02.008

Accumulation and health risks of heavy metals in edible marine shellfishes from China

CHENG Jia-li, ZHANG Xian-hui, ZHUO Qin, LIU Ting-ting, TANG Zhen-wu

(National Institute for Nutrition and Health, Chinese Center for Disease Control and Prevention, Beijing 100050, China)

Abstract: Objective To investigate the contamination and health risks of heavy metals in edible marine shellfishes from China. **Methods** Statistical characteristics of the concentrations of six metals, i. e., Cu, Pb, Cd, Cr, As and Hg, in the edible shellfishes from China offshore waters were investigated, and their health risks were assessed using the target hazard quotient model recommended by US EPA, based on the available information regarding the metal concentrations reported in published literatures. **Results** The Kolmogorov-Smirnov test indicated that all the six metals had skewed concentration distributions. The average contents of Pb, Cd, Cr, As and Hg did not exceed the food standards. In this study, several independent samples tests showed that the concentrations of As, Cu and Cd were significantly different ($P > 0.05$) among oyster, short necked clam, razor clam and mussel. In these four shellfishes, oyster had the highest levels of Cu and Cd, and razor clam had the highest level of As. No significant differences were observed for other three metals. In the Pearl River Estuary, Fujian coastal waters, the Yangtze River estuary-Zhejiang coastal waters, Shandong coastal waters and Bohai Bay, the non-carcinogenic risk levels from exposure to individual shellfish metal (including Cu, Pb, Cr, and Hg) were separately acceptable. However, the health risks from exposure to Cd in some shellfishes from Fujian coastal waters, Shandong coastal waters and Bohai Bay, and from exposure to As in some shellfishes from Fujian coastal waters, exceeded the acceptable levels. Although the health risk levels from exposure to multiple metals in shellfishes from Fujian coastal waters, Shandong coastal waters and Bohai Bay were unacceptable for children, the non-carcinogenic risks from six metals in other waters were within the safe level. The findings suggested that Cd and As were the key contributors to health risk from exposure to shellfish metals. **Conclusion** In China coastal waters, the concentrations of Cu, Cd and Cr in some

收稿日期:2015-11-16

基金项目:国家环境保护公益性行业科研专项(201309023)

作者简介:程家丽 女 助理研究员 研究方向为食品营养与安全 E-mail:jlcheng77@163.com

通信作者:唐阵武 男 副教授 研究方向为环境与健康 E-mail:zwtang@ncepu.edu.cn

shellfishes exceeded the food standard. The health risks from Cd and As were unacceptable in some shellfishes in some area, respectively. In this study, no serious heavy metal pollutions were found in the edible marine shellfishes, but the risk of multiple metals exposure in the shellfishes should be of concern.

Key words: Edible marine shellfishes; heavy metal; pollution characteristics; human risks

近年来我国海洋环境污染日益严重,尤以重金属污染问题较为突出。有研究表明,我国渤海重金属污染较为普遍,其中辽东湾北部海域沉积物中镉(Cd)和汞(Hg)严重超标^[1]。南黄海近岸海域 90% 站位的表层沉积物中重金属达到中等污染水平,30% 站位存在中等生态风险^[2]。阮金山等^[3]也报道了泉州大港湾沉积物中 Cd 含量超标。同时,我国海水也存在着重金属污染。黄向青等^[4]研究发现,深圳大鹏湾和珠江口海水中铬(Cr)和铅(Pb)超标,其中 Pb 污染严重。舟山海域 Hg 污染严重,杭州湾北岸海水中也存在着 Pb 和 Hg 的污染^[5]。海水和沉积物的重金属污染使海洋水产品存在着高累积风险。

海洋贝类属于滤食性生物,其生活习性和生理特点决定了贝类易于累积海洋中重金属^[6-7]。研究者对我国不同海域的食用贝类重金属污染进行了研究,结果表明不同海域、不同种类贝类各重金属累积程度迥异,其中部分食用贝类存在着重金属超标现象,有的还较为严重^[8-10]。据统计,2013 年我国捕捞和养殖的海洋贝类的总产量达 1 380 万吨,其中牡蛎、蛤、扇贝和贻贝等是主要的海洋食用贝类水产品^[11]。因此,海洋食用贝类重金属累积水平直接关系到人体健康。然而迄今,还鲜见对我国海洋食用贝类整体重金属污染的报道。

为全面、整体的了解我国海洋食用贝类的重金属污染及人体健康风险,本文基于现有报道数据,全面分析了我国海洋食用贝类的重金属污染特征,并利用健康风险评价方法评估我国海洋食用贝类重金属污染的健康风险,以期为我国海洋食用贝类的膳食摄入选择以及海洋食用贝类重金属污染防治提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 数据采集

从 2001—2015 年发表的文献中,收集海洋食用贝类重金属含量数据。重金属元素选取为铜(Cu)、铅、镉、铬、砷(As)及汞。文献的收集和筛选遵循以下原则:①明确报道了监测的海洋贝类种类和重金属元素;②重金属含量(质量浓度)的测定采用了美国环保局(EPA)推荐的标准方法或国家标准方法,采用原子吸收光谱法或电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)法测定;③文献中明确报道了采样区域;④食用贝类

重金属含量为湿重含量,或者明确给出了贝类的干重/湿重比例。为避免海洋排污口等重度污染或远海环境清洁对照区等情况的干扰,对样本数据中的极端区域的文献进行了筛选与剔除。

此外,筛选相关数据的文献还必须满足:①监测数据量至少 10 个;②数据至少包括范围、算数平均值或中位数及其标准差等相关统计量;③至少包括 2 个采样点。同时,为了使所选数据具有可比性,该研究将重金属含量全部转换为湿重含量。本研究收集的数据中,食用贝类主要包括牡蛎、菲律宾蛤仔、缢蛏、贻贝、扇贝、毛蚶、螺,其中牡蛎、菲律宾蛤仔、缢蛏、贻贝 4 类占总样品数据的 90% 以上。报道的区域包括从海南沿海至大连沿海,主要为长江口-浙江沿海、山东沿海、珠江口、渤海湾、福建沿海几大海域。经过整理,收集有效样品数为 2 511 个^[8-9,12-48],即 Cu 为 507 个,Pb 为 547 个,Cd 为 551 个,Cr 为 291 个,As 为 274 个,Hg 为 341 个。本研究中,各重金属含量均以金属的总量计,不分各形态。

1.2 健康风险评价

采用 EPA 提出的靶器官危害系数(THQ_s)法评估重金属的人体健康风险^[49]。该方法主要通过评估人体摄入食物中重金属的剂量是否超出相应的参考剂量来判断人体的暴露风险。其计算方法为 $THQ_s = EF \times ED \times FIR \times C \times 10^{-3} / (RfD \times BW \times TA)$,式中 EF:暴露频率,365 d/年;ED:暴露年限,70 年;FIR:食物摄取率,g/d(对于儿童取值 8.82,对于成人取值 20.1)^[50];C:贝类中重金属的含量,mg/kg;RfD:摄入参考剂量,对 Cu、Pb、Cd、Cr、As、Hg 分别取 40、3.5、1.0、3.0、0.3 和 0.1 μg/kg BW^[51-52];BW:体重(儿童取 32 kg,成人取 60 kg)^[52];TA:非致癌源的平均暴露时间,为期望寿命×365 d/年。

重金属对人体健康的影响一般是多种元素共同作用的结果。这里,假设各重金属的危害作用为相加,因此重金属总风险(TTHQ)为: $TTHQ = THQ_1 + THQ_2 + \cdots + THQ_n$ 。如果 $TTHQ \leq 1.00$,表明没有明显的负面影响;若 $TTHQ > 1.00$,表明可能对人体健康产生负面影响;当 $TTHQ > 10.00$ 时,表明存在明显的毒性效应^[53]。

1.3 统计学分析

采用 SPSS 18.0 软件分析食用贝类中各重金属

含量的平均值、标准差、变异系数、偏度系数、峰态系数、分布形态等统计学特征以及重金属污染健康风险值的统计学特征,其中正态分布的判定采用 Kolmogorov-Smirnov 检验, $P < 0.05$ 为差异有统计学意义。重金属含量以及风险值的差异性采用非参数检验分析,即 Mann-Whitney U test(两个独立样本)检验或 Kruskal-Wallis H 检验(两个以上独立样本)。

2 结果

2.1 贝类重金属含量的统计特征

我国海洋食用贝类中 Cu、Pb、Cd、Cr、As 和 Hg 含量及其统计学特征如表 1 所示。总体上,我国海洋食用贝类中各重金属分布呈现明显的不均匀性。经检验,6 种重金属均呈非正态分布($P < 0.05$)。所有金属呈现右偏,即向右侧拖尾,数据主要分布在低值范围内。就峰态而言,Hg、As、Cu 和 Cd 属于尖峰态,数据分布域较窄,其余重金属均为缓峰态,数据分布域较宽。此外,6 种重金属的变异系数均大于 100%,表明我国海洋食用贝类重金属受人为源影响较大。

与国外海洋食用贝类重金属污染相比(见表 2),我国海洋食用贝类中 Cu 和 Cd 累积明显,其他

表 1 我国海洋食用贝类中重金属含量统计特征
Table 1 Summary of heavy metal concentrations, with basic statistical parameters, for edible marine shellfishes from China

| 重金属 | 样品数 /份 | 最小值 /(mg/kg) | 最大值 /(mg/kg) | 中位值 /(mg/kg) | 算术平均值 /(mg/kg) |
|-----|-----------|-----------------|-----------------|-----------------|-------------------|
| Cu | 507 | 0.13 | 1 067 | 3.23 | 26.8 |
| Pb | 547 | 0 | 8.50 | 0.22 | 0.49 |
| Cd | 551 | 0 | 312 | 0.38 | 1.69 |
| Cr | 291 | 0 | 6.93 | 0.39 | 0.81 |
| As | 274 | 0 | 38.7 | 0.81 | 1.45 |
| Hg | 341 | 0 | 11.6 | 0.010 | 0.070 |

| 重金属 | 标准差 /(mg/kg) | 变异系数 /% | 峰度 系数 | 偏度 系数 | 食品中污染物 限量/(mg/kg) (GB 2762— 2012) |
|-----|-----------------|------------|----------|----------|--|
| Cu | 74.8 | 279 | 7.60 | 83.7 | — |
| Pb | 0.89 | 183 | 4.90 | 31.8 | 1.5 |
| Cd | 13.5 | 795 | 22.5 | 519 | 2.0 |
| Cr | 1.05 | 130 | 2.72 | 9.60 | 2.0 |
| As | 2.83 | 195 | 9.52 | 115 | 0.5 ^a |
| Hg | 0.640 | 972 | 17.7 | 319 | 0.5 ^b |

注:a 为无机砷;b 为 Hg 为甲基汞;—为未规定该项指标限量值
重金属含量与国外相当。我国贝类中 Cu 的平均含量为 26.8 mg/kg,较国外部分海域贝类中 Cu 高一个数量级。我国海洋贝类中 Cd 平均含量较国外高 1~2 个数量级。

表 2 我国与国外海洋食用贝类重金属含量的比较/(mg/kg)

| Table 2 Concentrations of metals in edible marine shellfishes from China coastal waters and other waters. Values are presented as range and/or mean | | | | |
|---|------------------------|---------------------|--------------------|-------------------|
| 产地 | 贝类种类 | 铜含量 | 铅含量 | 镉含量 |
| 中国,东部-南部沿海 | 牡蛎、菲律宾蛤仔、缢蛏、贻贝、扇贝、毛蚶、螺 | 0.13~1 067.00(26.8) | 0~8.50(0.49) | 0~312(1.69) |
| 克罗地亚,亚德里亚海岸 | 牡蛎、扇贝 | — | 0.14~2.07(0.53) | 0.030~1.27(0.250) |
| 马来西亚,西海岸 | 贻贝 | 1.32~3.42 | 0.43~1.49 | 0.120~0.220 |
| 罗马尼亚,黑海沿岸 | 贻贝、螺 | 6.19 | 0.17 | 1.03 |
| 地中海,东部海岸 | 蛤 | — | 0.07 | 0.010 |
| 西班牙,北部海岸 | 贻贝 | 0.78~1.95(0.98) | 0.17~0.69(0.32) | 0.08~0.31(0.15) |
| 埃及,亚历山大海域 | 蛤 | 1.20 | 1.30 | 0.270 |
| 西班牙,南部海岸 | 蛤 | 3.92 | 0.49 | 0.050 |
| 产地 | 铬含量 | 砷含量 | 汞含量 | 文献 |
| 中国,东部-南部沿海 | 0~6.93(0.81) | 0~38.7(1.45) | 0~11.60(0.070) | 本研究 |
| 克罗地亚,亚德里亚海岸 | — | 1.42~9.98(3.45) | 0.010~0.680(0.150) | [54] |
| 马来西亚,西海岸 | — | — | — | [55] |
| 罗马尼亚,黑海沿岸 | 0.39 | — | — | [56] |
| 地中海,东部海岸 | 0.25 | 1.53 | — | [57] |
| 西班牙,北部海岸 | — | — | 0.010~0.090(0.020) | [58] |
| 埃及,亚历山大海域 | 1.15 | — | — | [59] |
| 西班牙,南部海岸 | 0.19 | 1.49 | 0.020 | [60] |

注:括号中的数字为均值;—表示无数据

与 GB 2762—2012《食品中污染物限量》^[61]相比,海洋食用贝类中 Pb、Cd 和 Cr 含量均值均未超过标准限值。Hg 平均含量也小于标准中甲基汞限值。通常,贝类中无机砷的含量约为总砷含量的 10%^[62]。贝类中无机砷含量以总砷的 10%计,则

无机砷的平均含量(0.145 mg/kg)也未超过该标准限值。尽管 GB 2762—2012 取消了 Cu 含量的限值,但 Cu 摄入过高仍会对健康产生危害。本研究中,贝类中 Cu 平均含量未超 GB 18406.4—2001《农产品安全质量 无公害水产品安全要求》^[63]。

进一步分析贝类重金属含量的统计学特征,结果表明 Cu、Pb、Cd、Cr、As 和 Hg 在第 90 百分位分布值分别为 69.9、1.23、2.57、2.16、2.96、0.064 mg/kg。Cu、Cd 和 Cr 含量的第 90 百分位分布值存在超标现象,超标倍数分别为 0.40、0.29、0.08;而 Pb、As 和 Hg 第 90 百分位分布值均不超标。

2.2 典型贝类重金属的累积特征

基于获得的数据,选取牡蛎、菲律宾蛤仔、缢蛏及贻贝 4 类典型食用贝类,分析其重金属累积特征。图 1 给出了不同区域 4 种食用贝类重金属含量的分布特征。4 种贝类中 As、Cu 和 Cd 的含量均差异有统计学意义($P < 0.05$)。牡蛎中 Cu 含量[(87.3 ± 168) mg/kg]高于菲律宾蛤仔[(2.57 ± 2.38) mg/kg]、缢蛏[(3.77 ± 2.83) mg/kg]及贻贝[(2.38 ± 2.75) mg/kg];菲律宾蛤仔、缢蛏及贻贝中 Cu 含量差异较小。牡蛎中 Cd 含量[(1.32 ± 1.27) mg/kg]也最高,分别为贻贝、缢蛏、菲律宾蛤仔的 2.43、4.58、5.49 倍。贝类中 As 含量以缢蛏最大[(2.14 ± 3.97) mg/kg],贻贝最小[(1.20 ± 0.83) mg/kg]。4 种贝类 Pb、Cr 和 Hg 含量范围分别为 0.01 ~ 4.05、0 ~ 6.93、0 ~ 11.6 mg/kg,不同贝类均差异无统计学意义($P > 0.05$)。

2.3 贝类重金属污染的人体健康风险

表 3 为我国海洋食用贝类经摄食途径所产生的

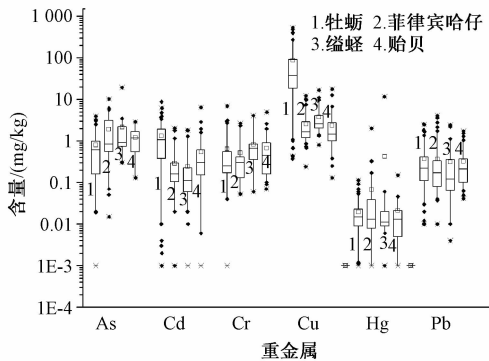


图 1 典型海洋食用贝类重金属含量

Figure 1 Concentrations of heavy metals in typical edible marine shellfishes

潜在健康危害系数 (THQs)。对于单一元素,我国 5 个典型海域食用贝类中 Cu、Pb、Cr、Hg 对成人及儿童的 THQ 值均基本小于 1.0,表明海洋贝类产品中这 4 类重金属的人体健康风险较低。利用 SPSS 18.0 软件对 THQ 值进行统计分析,山东沿海、渤海湾和福建沿海贝类 Cd 的 THQ 第 95 百分位值大于 1.0,表明这 3 大海域部分贝类中 Cd 可能对人体产生一定的健康风险,且儿童的风险大于成人。福建海域贝类中 As 对成人和儿童的 THQ 第 95 百分位值为 2.81 和 4.93,表明该区域部分贝类 As 的人体健康风险较高。

表 3 我国海洋食用贝类中重金属的人体健康风险

| Table 3 Non-carcinogenic risks for adults and children because of exposure to marine shellfish metals in China | | | | | | | | | | | |
|--|---------|----------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| 重金属 | 统计百分位/% | 长江口-浙江沿海 | | 山东沿海 | | 珠江口 | | 渤海湾 | | 福建沿海 | |
| | | 成人 | 儿童 | 成人 | 儿童 | 成人 | 儿童 | 成人 | 儿童 | 成人 | 儿童 |
| Cu | 5 | 0.01 | 0.01 | 0.02 | 0.03 | 0.02 | 0.03 | 0.01 | 0.01 | 0.00 | 0.01 |
| | 50 | 0.03 | 0.05 | 0.11 | 0.19 | 0.22 | 0.38 | 0.01 | 0.03 | 0.08 | 0.13 |
| | 95 | 0.69 | 1.22 | 0.61 | 1.08 | 1.75 | 3.07 | 0.61 | 1.08 | 0.36 | 0.63 |
| Pb | 5 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.01 | 0.01 | 0.02 | 0.00 | 0.01 | 0.01 | 0.02 |
| | 50 | 0.02 | 0.03 | 0.01 | 0.01 | 0.04 | 0.07 | 0.01 | 0.02 | 0.08 | 0.13 |
| | 95 | 0.14 | 0.24 | 0.02 | 0.03 | 0.14 | 0.25 | 0.03 | 0.06 | 0.27 | 0.47 |
| Cd | 5 | 0.02 | 0.03 | 0.04 | 0.07 | 0.02 | 0.03 | 0.02 | 0.03 | 0.05 | 0.08 |
| | 50 | 0.08 | 0.15 | 0.48 | 0.85 | 0.06 | 0.11 | 0.21 | 0.37 | 0.14 | 0.25 |
| | 95 | 0.73 | 1.28 | 1.58 | 2.77 | 0.53 | 0.93 | 1.27 | 2.23 | 1.27 | 2.23 |
| Cr | 5 | 0.00 | 0.00 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.02 | 0.01 | 0.02 | 0.00 | 0.00 |
| | 50 | 0.04 | 0.07 | 0.02 | 0.03 | 0.04 | 0.07 | 0.05 | 0.08 | 0.03 | 0.05 |
| | 95 | 0.18 | 0.32 | 0.04 | 0.08 | 0.19 | 0.34 | 0.17 | 0.30 | 0.33 | 0.57 |
| As | 5 | 0.04 | 0.06 | 0.01 | 0.02 | 0.07 | 0.13 | 0.04 | 0.08 | 0.00 | 0.00 |
| | 50 | 0.09 | 0.15 | 0.06 | 0.11 | 0.14 | 0.25 | 0.17 | 0.30 | 0.18 | 0.32 |
| | 95 | 0.14 | 0.24 | 0.14 | 0.25 | 0.58 | 1.02 | 0.29 | 0.52 | 2.81 | 4.93 |
| Hg | 5 | 0.02 | 0.03 | 0.01 | 0.02 | 0.00 | 0.00 | 0.01 | 0.02 | 0.00 | 0.00 |
| | 50 | 0.05 | 0.08 | 0.04 | 0.08 | 0.03 | 0.06 | 0.13 | 0.24 | 0.01 | 0.01 |
| | 95 | 0.18 | 0.32 | 0.08 | 0.14 | 0.09 | 0.16 | 0.34 | 0.59 | 0.16 | 0.29 |
| 总风险 | 5 | 0.16 | 0.27 | 0.20 | 0.35 | 0.26 | 0.45 | 0.15 | 0.26 | 0.20 | 0.35 |
| | 50 | 0.49 | 0.85 | 0.83 | 1.45 | 0.53 | 0.93 | 0.74 | 1.30 | 0.68 | 1.19 |
| | 95 | 1.92 | 3.37 | 2.30 | 4.03 | 2.73 | 4.79 | 2.22 | 3.89 | 4.68 | 8.21 |

由 TTHQ 的第 50 百分位值可见,除山东沿海、渤海湾和福建沿海贝类金属污染对儿童的风险值大于 1.00 外,其他海域的贝类中的 TTHQ 均较小。但值得

注意的是,所有海域贝类金属的 TTHQ 的第 95 百分位值均大于 1.00,尤其是福建沿海贝类污染对成人和儿童的 TTHQ 分别达 4.68 和 8.21,需引起高度重视。

本研究中,贝类中同一金属对成人总风险和儿童总风险的贡献率是一致的。图2为贝类中各金属对总风险的贡献率(以中位数值计)。由图2可见,不同重金属对总风险的贡献率迥异。除珠江口Cu贡献较大外,Cd和As是我国贝类重金属污染产生人体健康的主要元素,其中Cd的贡献为14.0%~57.0%,山东沿海贝类Cd对总风险的贡献率最大。福建沿海和珠江口贝类中As对总风险的贡献率最大,分别为32.0%和30.0%,以As污染为主。

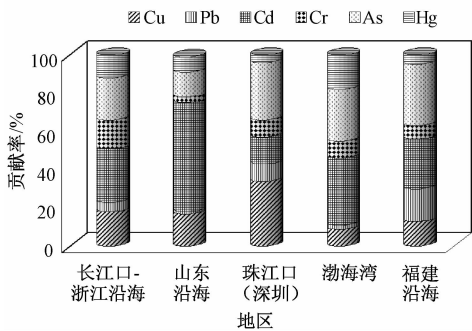


图2 海洋食用贝类中不同金属对总风险的贡献率

Figure 2 Profiles of metal contributions to total human risk from exposure to marine shellfish metals

3 讨论

我国海洋食用贝类中Cu、Pb、Cr、Hg的人体暴露非致癌风险总体较小。但Cd和As含量累积较为明显,是贝类重金属污染人体健康风险的主要贡献者,其中以Cd对总风险的贡献最大,部分海域贝类Cd和As对人体的健康风险超出了可接受水平。大量研究报道了我国沿海水域Cd污染较为严重,其中工业、农业及交通运输等是沿海水域Cd的主要来源^[1,3,64]。重金属Cd主要工业污染源是电镀、五金加工、采矿、石油化工和化学工业等废水的排放^[1,64]。Cd是贝类非必需元素,会对贝类生长产生毒害。在贝类体内,Cd能诱导产生金属硫蛋白,而金属硫蛋白有解毒作用,能降低或解除Cd的毒性。这一过程中,Cd通常在贝类体内能累积到较高水平^[65]。例如,有研究表明,牡蛎对海洋环境中Cd的吸收为净积累,半衰期长,排出量少^[7]。还有研究表明,牡蛎对Cu的蓄积能力较强,而牡蛎体内的Cu对Cd累积具有协同作用,从而可能导致牡蛎体内Cd含量较高^[16,66]。Cd除了对人体具有毒性效应外,还会对人体产生致癌效应,其已被国际癌症研究署列为I类人类致癌物^[51]。因此,应高度重视我国海洋食用贝类中Cd污染的人体健康风险,尤其是Cd污染较重海域的贝类Cd的摄入风险。

As是另外一种毒性元素,其来源较为复杂。有

研究报道我国环渤海13个城市As的排海通量达2000吨/年^[67]。海洋贝类As累积较高,可能是因为滩涂表层的微生物能将表层沉积物中与铁、锰、铝的氢氧化物和水合氧化物共沉淀的砷还原以及将生物尸体中的砷矿化成砷酸盐释放至间隙水中,从而被贝类利用并累积^[68]。值得指出的是,As对人体的毒害主要形态为无机砷,而有机砷的毒性较小,尤其是砷甜菜碱、砷胆碱和砷糖通常被认为是无毒的^[69]。有研究表明,贝类中As通常主要是以有机砷形式存在,通常占总As含量的90%以上^[62],吴永宁等^[70]研究证实部分甲壳类中有机砷甚至占总砷的99%。赵艳芳等^[69]研究进一步证实,砷甜菜碱是贝类水提液的主要形态,其中砷甜菜碱是毛蚶水提液中唯一的砷形态;扇贝、牡蛎、菲律宾蛤仔、毛蚶、贻贝经人体胃和肠消化液作用后,均未检出4种主要有毒砷形态。这表明,食用贝类中As总量不足以全面的反映人体健康暴露风险。

我国不同海域食用贝类重金属污染存在较大差异性,除主要决定于当地海域的环境污染外,可能还与季节,海水的温度、溶解氧和盐度等有关^[71]。这些因素一方面影响贝类的生理活动和代谢机能,从而影响到贝类对重金属的吸收和累积;另一方面,这些因素也影响着重金属的存在形态,进而影响到其生物可利用性,导致其在贝类体内含量累积程度存在差异。另外,由于不同贝类的生活习性、生理代谢等的差异性导致其重金属累积存在明显差异。而且贝类年龄、大小、性别、繁殖状态等也可能影响其重金属的累积。这些差异性还需进一步研究,以期为人群对贝类的膳食选择提供更准确的依据。

本研究可能存在一定的偏倚性。本研究搜集的相关文献均为公开发表的数据,未包括未发表的数据,因此所选择的数据存在文献偏倚。此外,所选文献中贝类的采样时间为1998—2013年,时间跨度相对较长,不同采样时间的监测数据很难避免长期趋势的混杂偏倚。所选文献的研究区域尽管包括了从海南沿海至大连湾海域的我国东部-南部沿海,但并没有包括我国全部沿海海域。并且,不同海域的报道数据并不均匀,报道的数据主要集中在长江口-浙江沿海、山东沿海、珠江口、渤海湾和福建沿海海域。这些海域通常为我国污染较为严重的区域,因此本研究采用的报道数据可能比我国海洋食用贝类重金属污染实际值偏高。

本研究采用靶器官危害系数法初步评估了海洋食用贝类的人体健康风险。评价中没有考虑到贝类中重金属的生物有效性,可能导致结果偏高。另外,健康风险评价中涉及到较多参数,如摄入量、

体重等,特别是我国不同区域人群的贝类摄取率可能存在较大差异,导致评价结果存在一定的不确定性。本研究中未考虑其他食物摄入、呼吸、皮肤接触等多途径暴露对暴露剂量的贡献,因此导致评价结果过低。贝类中不同重金属对人体的毒害作用除了相加外,还可能存在协同或拮抗作用。这些因素导致了本研究结果具有一定的不确定性。

参考文献

[1] 林曼曼,张勇,薛春汀,等. 环渤海海域沉积物重金属分布特征及生态环境评价[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2013, 33 (6): 41-45.

[2] 吕利云,董树刚,刘阳,等. 南黄海近岸海域表层沉积物重金属分布特征及污染评价[J]. 海洋湖泊通报, 2013 (4): 101-110.

[3] 阮金山,吴立峰,罗冬莲,等. 泉州大港湾海水、沉积物及水产生物体内重金属的含量分布[J]. 海洋通报, 2004, 23 (3): 41-45.

[4] 黄向青,张顺枝,霍振海. 深圳大鹏湾、珠江口海水有害重金属分布特征[J]. 海洋湖沼通报, 2005 (4): 8-43.

[5] 李娟英,崔昱,肖利,等. 舟山海域和杭州湾北岸水体及生物体内的重金属污染分析与评价[J]. 海洋通报, 2013, 32 (4): 440-446.

[6] 程海刚,林钦,蔡文贵,等. 常见海洋贝类对重金属和的积累与释放特征比较[J]. 农业环境科学学报, 2008, 27 (3): 1163-1167.

[7] 王晓丽,孙耀,张少娜,等. 牡蛎对重金属生物富集动力学特性研究生态学报[J]. 生态学报, 2004, 24 (5): 1086-1096.

[8] 王增焕,王许诺. 华南沿海贝类产品重金属含量及其膳食暴露评估[J]. 中国渔业质量与标准, 2014, 4 (1): 14-19.

[9] 刘升发,范德江,张爱滨,等. 胶州湾双壳类壳体中重金属元素的累积[J]. 海洋环境科学, 2008, 27 (2): 135-138.

[10] 曾艳霞,陈丽,周春兰. 连云港海域几种经济贝类中重金属残留量分析[J]. 安徽农业科学, 2013, 41 (34): 13378-13379.

[11] 农业部渔政渔业管理局. 中国渔业年鉴(2014) [M]. 北京: 中国农业出版社, 2014: 209.

[12] 阮金山,罗冬秀,李秀珠. 福建中、东部沿海主要养殖贝类体重金属的含量与评价[J]. 海洋环境科学, 2003, 22 (2): 44-48.

[13] 姜杰,丘红梅,张慧敏,等. 广东沿海海域海产品中重金属的含量及评价[J]. 环境与健康, 2009, 26 (9): 814-816.

[14] 杜克梅. 海南省近岸海域主要经济贝类重金属污染调查与评价[D]. 广州: 暨南大学, 2013.

[15] 陈秀开,田慧娟,刘吉堂,等. 海州湾近海海水、沉积物及贝类体内重金属的含量和分布特征[J]. 检验检疫学刊, 2009, 19 (5): 5-11.

[16] 杜瑞雪,范仲学,魏爱丽,等. 山东沿岸经济贝类体内重金属含量分析[J]. 山东农业科学, 2009 (8): 58-63.

[17] 王茂波,刘正毅,李静,等. 烟台市海域水产品中重金属和砷污染状况调查[J]. 中国食品卫生杂志, 2012, 24 (1): 67-70.

[18] 庞艳华,隋凯,王秋艳,等. 大连近海域双壳贝类重金属污染调查[J]. 海洋环境科学, 2012, 31 (3): 410-413.

[19] 徐韧,杨颖,李志恩. 海洋环境中重金属在贝类体内的蓄积分

析[J]. 海洋通报, 2007, 26 (5): 117-120.

[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): 4081-4088.

[21] 江锦花,江正玲,陈希方,等. 椒江口海域重金属含量分布及在沉积物和生物体中的富集[J]. 海洋环境科学, 2007, 26 (1): 58-62.

[22] 苗利军,王静,李志芬. 秦皇岛海域海产品汞污染状况及安全性评价[J]. 湖北农业科学, 2013, 52 (11): 2547-2549.

[23] 易斌,周鹏,周俊杰,等. 大亚湾海域 2007—2010 年海洋生物体内 Hg、Pb、Cd 和 As 含量及生物质量评价[J]. 海洋环境科学, 2014, 33 (2): 226-231.

[24] 秦春艳,方展强,唐以杰,等. 珠江口伶仃洋习见水生动物体内重金属含量测定与评价[J]. 华南师范大学学报, 2010 (3): 104-108.

[25] 张敬怀,欧强. 珠江口底栖生物重金属含量现状与评价[J]. 海洋环境科学, 2005, 24 (2): 50-52.

[26] 洪雄业. 兴化湾养殖贝类重金属累积及健康风险评价[J]. 海峡科学, 2014, 92 (8): 7-9.

[27] 李娟英,崔昱,曹宏宇,等. 小洋山码头潮间带地区海水及生物体内重金属污染特征的分析与评价[J]. 海洋湖沼通报, 2014 (1): 48-54.

[28] 李厦,刘宪斌,田胜艳,等. 天津大港近岸海域生物体内重金属-石油烃含量及其安全风险评价[J]. 安全与环境学报, 2013, 13 (3): 157-159.

[29] 邓利,林少铮,张慧敏,等. 深圳市潮间带动物体内的重金属含量[J]. 热带海洋学报, 2008, 27 (1): 60-64.

[30] 王许诺,王增焕,林钦,等. 广东沿海贝类 4 种重金属含量分析和评价[J]. 南方水产, 2008, 4 (6): 83-87.

[31] HE M, WANG W X. Bioaccessibility of 12 trace elements in marine mollusks[J]. Food Chem Toxicol, 2013 (55): 627-636.

[32] LI P, GAO X. Trace elements in major marketed marine bivalves from six northern coastal cities of China: concentrations and risk assessment for human health[J]. Ecotoxicol Environ Saf, 2014, 109 (7): 1-9.

[33] LIANG L N, HE B, JIANG G B, et al. Evaluation of mollusks as biomonitors to investigate heavy metal contaminations along the Chinese Bohai Sea [J]. Sci Total Environ, 2004, 324 (1/3): 105-113.

[34] Fung C N, Lam J C W, ZHENG G J, et al. Mussel-based monitoring of trace metal and organic contaminants along the east coast of China using *Perna viridis* and *Mytilus edulis*[J]. Environ Pollut, 2004, 127 (2): 203-216.

[35] 程华胜,徐轶肖,江天久,等. 深圳近岸养殖牡蛎体内污染物研究[J]. 生态科学, 2004, 23 (1): 20-24.

[36] Yatawara M, QI S, Owago O J, et al. Organochlorine pesticide and heavy metal residues in some edible biota collected from Quanzhou Bay and Xinghua Bay, southeast China[J]. J Environ Sci(China), 2010, 22 (2): 314-320.

[37] 吕海燕,曾江宁,周青松,等. 浙江沿岸贝类生物体中 Hg、Cd、Pb、As 含量的分析[J]. 东海海洋, 2001, 19 (3): 25-30.

[38] 阮金山. 厦门海域养殖贝类体内重金属的初步研[J]. 海洋科学, 2009, 33 (2): 32-37.

[39] 任敏,徐国峰,孔定江,等. 宁波海区经济贝类重金属污染现状及对人体健康风险分析[J]. 海洋开发与管理, 2010, 27 (9): 59-60.

[40] 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):291-296.

[41] 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):678-683.

[42] Ip C C,LI X D,ZHANG G, et al. Heavy metal and Pb isotopic compositions of aquatic organisms in the Pearl River Estuary, South China[J]. Environ Pollut,2005,138(3):494-504.

[43] 孙维萍,潘建明,刘小涯,等. 浙江沿海贝类体内重金属元素含量水平与评价[J]. 2010,28(4):43-48.

[44] 康飞金. 宁波海域滩涂主要养殖贝类重金属残留及其安全性评价[D]. 宁波:宁波大学,2010.

[45] 劲松,尚德荣,赵艳芳,等. 青岛市场养殖贝类体内重金属含量的分析[J]. 安徽农业科学,2010,38(21):11154-11155.

[46] 祝立. 福建平潭海坛海峡贝类监控区海水、沉积物及贝类体内重金属的分析与评价[J]. 福建水产,2004(3):60-63.

[47] 陈雪昌,尤炬炬,顾捷,等. 浙江自然海域养殖贝类3种重金属含量分析与评价[J]. 浙江海洋学院学报,2001,30(6):520-524.

[48] 马元庆,唐学玺,刘义豪,等. 山东半岛近海贝类污染状况调查与评价[J]. 海洋环境科学,2009,28(5):562-565.

[49] Power M,McCarty L S. Trends in the development of ecological risk assessment and management frameworks[J]. Human and Ecological Risk Assessment,2002,8(1):7-18

[50] USEPA. EPA/600/P-95/002Fa Exposure factors handbook[R]. Washington DC:USEPA,1977.

[51] WEI X,GAO B,WANG P, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of heavy metals in street dusts from different functional areas in Beijing, China[J]. Ecotoxicol Environ Saf,2015,112(11),186-192.

[52] 郑娜,王起超,郑冬梅. 基于 THQ 的锌冶炼厂周围人群食用蔬菜的健康风险分析[J]. 环境科学学报,2007,27(4):672-678.

[53] 李如忠,潘成荣,徐晶晶,等. 典型有色金属矿业城市零星菜地蔬菜重金属污染及健康风险评估[J]. 环境科学,2013,34(3):1077-1084.

[54] Bogdanovic T,Ujevic I,Sedak M,et al. As,Cd,Hg and Pb in four edible shellfish species from breeding and harvesting areas along the eastern Adriatic Coast, Croatia[J]. Food Chem,2014,146(1):197-203.

[55] Yapck,Ismail A,TAN S G. Heavy metal (Cd,Cu,Pb and Zn) concentrations in the green-lipped mussel *Perna viridis* (Linnaeus) collected from some wild and aquacultural sites in the west coast of Peninsular Malaysia[J]. Food Chem,2004,84(4):569-575.

[56] Jitar O,Teodosiu C,Oros A, et al. Bioaccumulation of heavy metals in marine organisms from the Romanian sector of the Black Sea[J]. N Biotechnol,2015,32(3):369-378.

[57] Copat C,Arena G,Fiore M,et al. Heavy metals concentrations in fish and shellfish from eastern Mediterranean Sea: consumption advisories[J]. Food Chem Toxicol,2013,53(11):33-37.

[58] Besadaa V,Andrade J M,Schultze F, et al. Monitoring of heavy metals in wild mussels (*Mytilus galloprovincialis*) from the Spanish North-Atlantic Coast[J]. Contin Shelf Res,2011,31(11):457-465.

[59] Hussein A,Khaled A. Determination of metals in tuna species and bivalves from Alexandria, Egypt[J]. Egypt J Aquat Res,2014,40(2):9-17.

[60] Usero J,Morillo J,Gracia I. Heavy metal concentrations in molluscs from the Atlantic Coast of southern Spain[J]. Chemosphere,2005,59(8):1175-1181.

[61] 中华人民共和国卫生部. GB 2762—2012 食品中污染物限量[S]. 北京:中国标准出版社,2012.

[62] 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.

[63] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. GB 18406. 4—2001 农产品安全质量 无公害水产品安全要求[S]. 北京:中国标准出版社,2001.

[64] 周笑白,梅鹏蔚,彭露露,等. 渤海湾表层沉积物重金属含量及潜在生态风险评价[J]. 生态环境学报,2015(3):452-456.

[65] 李玉环. 贝类体内重金属镉的富集和消除规律及食用安全性的研究[D]. 青岛:中国海洋大学,2005.

[66] 王增焕,林钦,王许诺. 南海北部沿岸贝类体内镉含量及健康风险评价[J]. 中国水产科学,2011,18(6):1406-1412.

[67] 崔正国. 环渤海13城市主要化学污染物排海总量控制方案研究[D]. 青岛:中国海洋大学,2008.

[68] 钟硕良,陈燕婷,吴立峰. 砷在贝类养殖区表层沉积物及贝类体中的积累和分布[J]. 热带海洋学报,2007,26(2):74-80.

[69] 赵艳芳,段元慧,尚德荣,等. 我国几种重要经济贝类中砷的含量及其形态特征转化规律[J]. 水产学报,2013,37(5):735-741.

[70] 吴永宁. 现代食品安全学[M]. 北京:化学工业出版社,2003.

[71] 王静凤. 重金属在海产贝类体内的累积及其影响因素的研究[D]. 青岛:中国海洋大学,2004.