

风险评估

中国水产品中指示性多氯联苯污染水平和健康风险评估

蔡宜家^{1,2},刘小方³,刘潇³,曹文成³,吴磊¹,周妍³,闻胜^{1,3}

- (1. 武汉科技大学公共卫生学院,湖北武汉 430065;2. 通山县疾病预防控制中心,湖北通山 437600;
3. 湖北省疾病预防控制中心,国家卫生健康委员会食品安全风险评估与标准研制特色实验室,
湖北武汉 430079)

摘要:目的 调查中国水产品中指示性多氯联苯(PCBs)的污染水平,评估人群暴露 PCBs 的健康风险。方法 选取中国 7 个主要水产品生产省份的 22 种共计 100 份水产品,采用同位素稀释-气相色谱-三重四极杆串联质谱(GC-MS/MS)法测定 7 种指示性 PCBs(PCB 28、52、101、118、138、153、180)的含量,并分析其污染特征。结合我国水产类的消费量数据,评估我国居民通过水产品暴露指示性 PCBs 的健康风险。结果 22 种水产品中 7 种指示性 PCBs(\sum_7 PCBs)的含量范围为 3.62~1755.23 pg/g,在全球属于偏低的水平且均低于 GB 2762—2022 规定的水产品限值。指示性 PCBs 的含量水平在物种间有显著差异,表现为海水鱼、蟹类显著高于淡水鱼、虾、贝类($P<0.05$)。通过指纹特征和主成分分析,发现 PCB 153 和 PCB 138 为主要的指纹特征,且大部分样品有着相似污染源。6 个省份水产品中 \sum_7 PCBs 的日均暴露量范围为 0.02×10^{-7} (辽宁)~ 2.40×10^{-6} mg/(kg·d)(浙江),危害商(HQ)值为 0.01×10^{-2} ~ 1.20×10^{-1} ,CR 值为 0.04×10^{-7} ~ 4.79×10^{-6} 。结论 中国水产品中 \sum_7 PCBs 的污染水平和日均暴露量均较低。HQ 值均小于 1,非致癌风险较低;中位数污染水平下,福建省水产品中 \sum_7 PCBs 的致癌风险值为 1.79×10^{-6} ,超过了 1.0×10^{-6} ,可能存在一定的风险。

关键词:水产品;持久性有机污染物;指示性多氯联苯;污染水平;风险评估

中图分类号:R155 文献标识码:A 文章编号:1004-8456(2024)09-1035-07

DOI:10.13590/j.cjfh.2024.09.007

Contamination levels and health risk assessment of indicator polychlorinated biphenyls in aquatic products in China

CAI Yijia^{1,2}, LIU Xiaofang³, LIU Xiao³, CAO Wencheng³, WU Lei¹, ZHOU Yan³, WEN Sheng^{1,3}

- (1. School of Public Health, Wuhan University of Science and Technology, Hubei Wuhan 430065, China;
2. Tongshan Center for Disease Control and Prevention, Hubei Tongshan 437600, China; 3. Hubei Center for Disease Control and Prevention, NHC Specialty Laboratory of Food Safety Risk Assessment and Standard Development, Hubei Wuhan 430079, China)

Abstract: Objective To assess the health risk exposed to polychlorinated biphenyls (PCBs), the levels of Indicator PCBs in aquatic products in China was investigated. **Methods** The concentration of seven indicator PCBs (PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153, 180) in 100 aquatic products samples, 22 species in total, which were collected from 7 major producing provinces in China were analyzed by isotope dilution - gas chromatography-triple quadruped tandem mass spectrometry (GC-MS/MS). The health risk of Chinese residents exposed to Indicator PCBs through aquatic products was assessed basing on the consumption date of aquatic products in China. **Results** The concentrations of the seven indicator PCBs (\sum_7 PCBs) in 22 species aquatic products ranged from 3.62 to 1755.23 pg/g, which was a low level on a global scale, and all were lower than the maximum limit of aquatic products stipulated in GB 2762—2022. The concentration levels were significantly difference among species, with marine fish and crabs were significantly higher than freshwater fish, shrimp and

收稿日期:2023-12-23

基金项目:国家重点研发计划(2023YFF1104800、2017YFC1600500);湖北省自然科学基金(2022CFB022);湖北省卫生健康科研基金(WJ2023M106);湖北省医学青年拔尖人才(S2020JY23)

作者简介:蔡宜家 女 硕士研究生 研究方向为卫生检验、食品安全 E-mail:602967780@qq.com

通信作者:周妍 女 主任技师 研究方向为食品安全与理化检验 E-mail:zy_hbcdc@163.com

闻胜 男 研究员 研究方向为食品安全 E-mail:wenshengy@qq.com

周妍和闻胜为共同通信作者

shellfish ($P < 0.05$). Through fingerprint characteristics and principal component analysis, it is found that PCB 153 and PCB 138 were the main fingerprint features, and most of the samples had similar sources of contamination. The average daily dose of \sum_7 PCBs in aquatic products in the six provinces ranged from 0.02×10^{-7} (Liaoning) to 2.40×10^{-6} mg/(kg·d) (Zhejiang), Hazard quotient (HQ) value ranged from 0.01×10^{-2} to 1.20×10^{-1} , and CR value ranged from 0.04×10^{-7} to 4.79×10^{-6} . **Conclusion** The level and average daily dose of \sum_7 PCBs in Chinese aquatic products were low. HQ values were less than 1, indicating low non-carcinogenic risk. At the median pollution level, the carcinogenic risk value of \sum_7 PCBs in aquatic products in Fujian Province was 1.79×10^{-6} , which exceeded 1.0×10^{-6} , indicating a certain carcinogenic risk.

Key words: Aquatic products; persistent organic pollutants; indicator polychlorinated biphenyls; contamination level; risk assessment

多氯联苯(Polychlorinated biphenyls, PCBs)是一种持久性有机污染物(Persistent organic pollutants, POPs),广泛存在于各类环境介质中。水体被污染后,PCBs可随食物链在水产品之间逐级富集。研究表明,人体长期暴露于PCBs,会造成神经毒性、内分泌紊乱、生殖功能损伤、致癌性等^[1-4]。饮食已被证明是人类暴露PCBs的主要来源之一,尤其是水产品的摄入^[5]。水产品因其营养价值高,口感鲜美,越来越受到大众的欢迎。我国水产品人均消费量从2015年的人均11.2 kg增长到2021年的14.2 kg^[6],消费量增长可能带来污染物摄入的健康风险增加。2022年,《食品安全国家标准 食品中污染物限量》(GB 2762—2022)修订了食品中指示性PCBs的限量,即水产动物及其制品中指示性PCBs的限量值由500 μ g/kg调整为20 μ g/kg^[7]。为了解我国水产品中指示性PCBs在GB 2762—2022实施后的污染状况,本研究分析了7个代表性省份市售的100份水产品中7种指示性PCBs的浓度水平,探讨了指

示性PCBs的区域分布、物种间的差异和污染特征,并进行了致癌和非致癌风险评估。

1 材料与方法

1.1 样品采样

山东省、广东省、浙江省、福建省和辽宁省是我国海水产品排名前5的产区,而湖北省、广东省和江苏省是我国淡水产品排名前3的产区,因此本研究选取以上7个省份的海鲜市场和养殖场,于2022年8月对22种常见的水产品(包括6种海水鱼、5种淡水鱼、4种蟹类、3种贝类、2种虾类、头足类和鱼子各1种)进行采集,其中山东省12份,广东省22份,江苏省7份、浙江省12份、湖北省20份、福建省15份、辽宁省12份,共计100份样品。为了使样品更具代表性,每个样本都是来自同一采样点、同一物种的3份水产品的混合样品,所有样品采集后立即运输至实验室,于-20℃的冰箱中冻存,具体样本信息、数量及脂肪含量见表1。

表1 100份水产品的种类、数量及脂肪含量表

Table 1 The species, quantity and fat content of 100 samples of aquatic products

种类	数量(n)	平均脂肪含量/%	种类	数量(n)	平均脂肪含量/%		
海水鱼	多宝鱼	5	1.94	虾	小龙虾	5	5.77
	大黄鱼	5	11.04		对虾	5	0.82
	鲈鱼	3	4.95	蟹	大闸蟹	5	9.09
	鲳鱼	5	6.85		梭子蟹	6	2.66
	海鳗	5	9.81		青蟹	3	4.28
	石斑鱼	2	3.38		赤甲红	1	2.27
淡水鱼	鲟鱼	5	3.86	贝	扇贝	5	0.89
	鳊鱼	5	1.50		牡蛎	5	2.08
	鳊鱼	5	19.53	头足类	鲍鱼	5	0.84
	鳊鱼	5	2.61		鱿鱼	5	1.37
	鳊鱼	5	2.37		鱼子	5	28.92

1.2 主要仪器与试剂

7890B-7010B 气相色谱-三重四极杆串联质谱仪、固相萃取装置(美国 Agilent 公司); ASE 350 加速溶剂萃取仪(美国 ThermoFisher Scientific 公司); Freezone⁶ 冷冻干燥机(美国 Labconco 公司); BF-2000 氮气吹干仪(北京八方世纪公司); MPE 型高通量真空平行浓缩仪(北京睿科集团公司)。

正己烷(纯度 $\geq 98\%$, 美国 ThermoFisher Scientific 公司); 二氯甲烷、丙酮(纯度 $\geq 99\%$, 美国 Thermo Fisher Scientific 公司); 一次性商业化多层净化柱(北京普立泰科公司); $^{13}\text{C}_{12}$ 标记的定量内标标准溶液(P48-W-ES, 纯度 $\geq 99\%$, 加拿大 Wellington 公司)、回收率内标标准溶液(P48-RS, 纯度 $\geq 99\%$, (加拿大 Wellington 公司))。

1.3 样品处理与检测

采用同位素稀释-气相色谱-三重四极杆串联质谱法测定水产品中的指示性 PCBs。其中样品前处理参照食品安全国家标准 GB 5009.190—2014 和 GB 5009.205—2013 中的方法。水产品的可食用部分均质后取适量样品与硅藻土混匀,填入萃取池中,加入 $^{13}\text{C}_{12}$ 标记的定量内标溶液(P48-W-ES),使用加速溶剂萃取仪在 130 °C 条件下以正己烷:二氯甲烷:丙酮(2:1:1)的体积比进行提取。在样品浓缩前准确称重茄形瓶,将提取液浓缩至尽干后过夜称重,两次称重结果的差值为样品的脂肪含量。采用正己烷复溶、酸化硅胶除脂后,经一次性商业化多层净化柱净化,收集多氯联苯组分,然后经氮气浓缩至含有 20 μL 壬烷的全回收进样小瓶中,加入回收率内标(P48-RS),待上机测定。色谱条件:DB-5 ms 气相色谱柱(30 m \times 0.25 mm \times 0.25 μm);进样口温度:290 °C;传输线温度 290 °C;升温程序:初始柱温为 90 °C 保持 0.5 min,以 15 °C/min 的升温速率升至 200 °C 保持 5 min,以 2.5 °C/min 的升温速率升至 250 °C 保持 2 min,20 °C/min 升至 300 °C,保持 5 min;载气流量:1.2 mL/min。质谱条件:EI 电离源,能量为 70 eV,离子源温度为 290 °C,多反应离子监测模式;同位素稀释定量,采用不分流进样,进样量为 1 μL 。

1.4 质量控制

为保证分析结果的准确性和可靠性,每批次样品包含 1 个方法空白和 1 份质控样品(GBW10040,国家标准物质研究中心),质控样品检测结果均在参考值范围内。7 种指示性 PCBs 定量内标的回收率在 91%~100% 之间,检出限为 1 ng/kg。本实验室为国家卫生健康委食品安全风险监测二噁英参比实验室,连续多年参加了挪威国立公共卫生研究院组织的食品中指示性 PCBs 的国际比对,结果均满意。

1.5 健康风险评估方法

本研究采用《化学物质环境健康风险评估技术指南》^[8]中的日均暴露量(Average daily dose, ADD)、危害商(Hazard quotient, HQ)、致癌风险(Carcinogenic risk; CR)来评估居民通过水产品摄入指示性 PCBs 的健康风险。

食品中化学物质经口摄入途径的日均暴露量,使用公式(1)计算:

$$\text{ADD} = \frac{C \times \text{IR} \times \text{EF} \times \text{ED}}{\text{BW} \times \text{AT}} \quad \text{公式(1)}$$

式中:ADD 为日均暴露量[mg/(kg·d)],C 为样品中指示性 PCBs 的含量(mg/kg,湿重);IR 为水产品摄

入量(g/d),数据采用《中国第五次总膳食研究》中各地区水产品的消费量^[9];EF 为暴露频率(d/a),EF 取 365 d/a,ED 为暴露周期(a),非致癌效应 ED 取值 30 a,致癌效应 ED 取值 70 a^[10];BW 为体质量(kg),数据来源于中国人群暴露参数手册^[11];AT 为平均时间(d),对于非致癌效应为 30 a \times 365,对于致癌效应固定为 25 550。

非致癌风险使用 HQ 表征,具体计算方法为:

$$\text{HQ} = \frac{\text{ADD}}{\text{RfD}} \quad \text{公式(2)}$$

式中:RfD 为 PCBs 经口摄入参考剂量,取值 2×10^{-5} mg/(kg·d)^[12]。HQ \leq 1,表示非致癌风险较低;HQ $>$ 1,表示非致癌风险较高;

致癌风险使用 CR 表征,其计算公式为:

$$\text{CR} = \text{ADD} \times \text{SF} \quad \text{公式(3)}$$

式中:SF 为 PCBs 经口摄入致癌斜率因子,取值 $2 \text{ kg} \cdot \text{d} / \text{mg}^{[12]}$ 。CR $<$ 1.0×10^{-6} ,表示致癌风险较低;CR 为 1.0×10^{-6} ~ 1.0×10^{-4} ,表示具有一定致癌风险;CR $>$ 1.0×10^{-4} ,表示致癌风险较高。

2 结果

2.1 水产品中指示性 PCBs 的含量水平

所有的水产品均不同程度地检测出 PCBs,以 7 种 PCBs 之和($\sum_7\text{PCBs}$)表示水产品污染水平, $\sum_7\text{PCBs}$ 含量范围为 3.62~1 755.23 pg/g,远低于我国食品安全国家标准 GB 2762—2022(20 ng/g)和欧盟法规规定的水产品中指示性 PCBs 最高限值(75 ng/g)。不同种类的水产品间的污染水平存在极大差别,在平均水平上,含量依次为蟹类>海水鱼>鱼类>淡水鱼>头足类>虾类>贝类。在蟹类中,含量依次为青蟹>大闸蟹>梭子蟹;海水鱼中,含量依次为大黄鱼>海鳗>鲆鱼;虾类中小龙虾含量最大,具体信息见表 2。采用 Kruskal-Wallis 检验,结果显示, $\sum_7\text{PCBs}$ 含量在水产种类之间存在统计学差异,海水鱼体内 $\sum_7\text{PCBs}$ 含量显著高于淡水鱼、虾和贝类($P<0.05$),蟹类体内 $\sum_7\text{PCBs}$ 含量也显著高于淡水鱼、虾和贝类($P<0.05$),而海水鱼和蟹类之间无显著差异($P>0.05$)。本研究对这 100 份样品中 $\sum_7\text{PCBs}$ 的含量与脂肪含量做了 Spearman 相关性分析,结果显示二者之间呈现显著正相关($r_s=0.785, P<0.001$)。

2.2 我国 7 个省份水产品中 PCBs 的含量和组成特征

我国山东省、广东省、江苏省、浙江省、湖北省、福建省和辽宁省不同地区水产品中 $\sum_7\text{PCBs}$ 含量的 P_{50} 分别为 354.37、137.61、274.43、146.59、120.59、324.46 和 236.82 pg/g,7 个省份水产品中 $\sum_7\text{PCBs}$ 含

表2 22种水产品7种PCBs含量水平(pg/g湿重)

Table 2 Levels of $\sum_7\text{PCBs}$ in 22 species aquatic products (pg/gww)

种类	PCB 28	PCB 52	PCB 101	PCB 118	PCB 138	PCB 153	PCB 180	$\sum_7\text{PCBs}$	$\sum_7\text{PCBs}$	
	\bar{x}	\bar{x}	\bar{x}	\bar{x}	\bar{x}	\bar{x}	\bar{x}	\bar{x}	范围	
海水鱼	大黄鱼	52.80	82.53	112.43	79.22	143.23	246.82	86.28	803.31	633.00~976.40
	海鳗	22.63	71.78	105.66	85.23	139.16	301.64	75.50	801.60	369.83~1 755.23
	鲱鱼	16.39	47.90	94.23	75.74	91.98	160.87	35.89	523.00	313.81~736.85
	多宝鱼	17.62	46.85	78.50	62.14	78.39	127.40	28.92	439.82	324.36~552.77
	石斑鱼	9.14	22.27	42.62	49.65	70.23	130.67	46.01	370.60	354.46~386.75
	鲳鱼	13.21	26.32	41.22	34.84	53.42	96.16	26.98	292.15	91.64~566.24
淡水鱼	鳊鱼	30.45	49.31	74.09	70.46	109.61	178.19	64.64	576.74	435.87~678.16
	鳙鱼	7.68	27.74	8.48	19.56	30.15	41.51	8.16	143.27	51.17~254.53
	鳊鱼	12.14	12.27	16.84	20.49	23.29	25.68	12.69	123.40	13.56~302.50
	鲈鱼	7.66	11.37	15.87	13.47	20.31	34.93	12.97	116.60	98.64~159.80
	鳊鱼	5.87	7.19	4.34	2.85	2.98	3.91	1.14	28.27	14.29~51.80
虾	小龙虾	10.27	13.99	14.63	23.12	26.80	42.28	11.94	143.03	3.62~274.43
	对虾	1.60	1.21	3.48	4.30	4.00	7.17	2.10	23.85	14.91~46.13
蟹	青蟹	72.95	5.66	36.27	185.49	184.14	288.16	122.53	895.20	351.91~1 429.58
	大闸蟹	28.49	47.01	117.67	125.96	154.30	239.96	63.23	776.62	391.43~1 682.01
	梭子蟹	9.08	7.31	26.77	49.48	77.96	193.41	36.20	400.21	128.78~952.17
	赤甲红	24.22	7.54	6.87	57.45	80.95	146.48	28.39	351.91	351.91~351.91
贝	牡蛎	4.51	8.71	13.83	10.59	12.20	31.96	2.62	84.43	12.87~164.40
	扇贝	2.42	5.39	5.77	4.07	5.01	17.62	1.84	42.12	13.34~96.55
	鲍鱼	1.98	2.14	1.67	1.45	n.d.	1.66	n.d.	9.81	6.49~14.67
头足类	鱿鱼	2.94	5.61	12.60	10.51	15.59	28.43	8.61	84.29	25.15~149.57
鱼子	鱼子	42.76	52.56	67.32	63.46	90.86	145.55	46.45	508.97	32.32~1 000.96

注:计算指示性多氯联苯总量时,未检出(n.d.)按照0计算

量经 Kruskal-Wallis 检验分析,无显著差异($P>0.05$)。

如图 1 所示,不同地区水产品中 PCBs 组成特征相似,均以六氯代 PCB153 和 PCB138 主,占比约 40%,其次是五氯联苯、七氯联苯和三氯联苯。可能

与低氯代联苯更容易挥发,而弱降解性的高氯代在环境中滞留时间更长有关。类似的 PCBs 组成特征在广东汕头^[13]、福建莆田^[14]等地区水生生物体内也得到了证实,这表明了我国水产品中 PCBs 的污染现状。

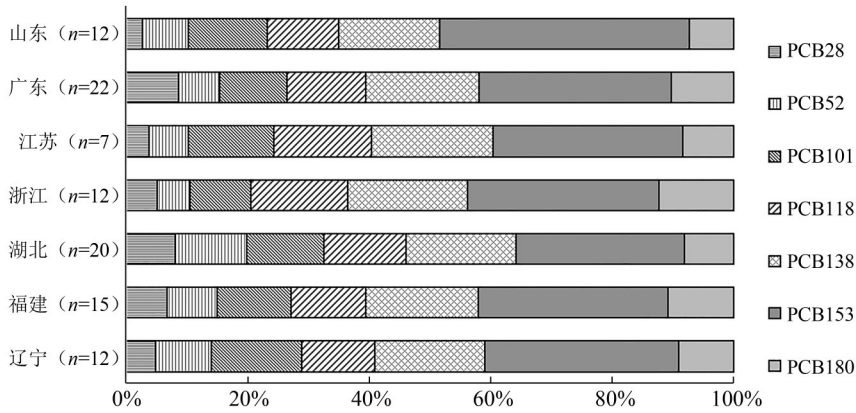


图1 不同省份水产品中7种指示性PCBs的浓度百分比

Figure 1 The percentage levels of indicator PCBs in aquatic products from different provinces

主成分分析也显示(图 2), PCB153 和 PCB138 最接近水平轴,表明其对第一主成分 PC1 具有较大的贡献,是最优势污染物,且 7 个省份多数样品呈聚集模式,只有山东的海鳗和浙江的青蟹等个别样品较分散,提示大部分的水产品有相似的污染源。

2.3 健康风险评估

2.3.1 日均暴露量

6 个省份水产类 $\sum_7\text{PCBs}$ 的 ADD 值范围为 0.02×10^{-7} (辽宁)~ 2.40×10^{-6} mg/(kg·d) (浙江),平均值 0.29×10^{-6} mg/(kg·d)。就中位数水平而言,日

均暴露量最高的是福建 [0.90×10^{-6} mg/(kg·d)],其后依次是江苏 [0.35×10^{-6} mg/(kg·d)],浙江 [0.25×10^{-6} mg/(kg·d)]。

2.3.2 致癌与非致癌风险

对 6 个省份水产品中 $\sum_7\text{PCBs}$ 进行非致癌风险评价,结果见表 3。6 个省份 HQ 值范围分别为 0.05×10^{-2} ~ 0.40×10^{-1} 、 0.21×10^{-2} ~ 1.07×10^{-1} 、 0.12×10^{-2} ~ 1.20×10^{-1} 、 0.01×10^{-2} ~ 0.35×10^{-1} 、 0.09×10^{-2} ~ 1.11×10^{-1} 、 0.01×10^{-2} ~ 0.10×10^{-1} 。6 个省份的致癌风险范围为 0.04×10^{-7} ~ 4.79×10^{-6} ,最低污染水平下的致癌风险均小于

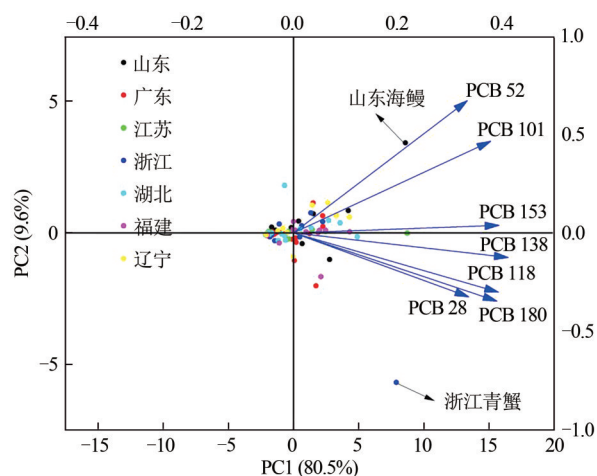


图2 7个省份样品中指示性PCBs的主成分分析图
Figure 2 PCA plot of the indicator PCBs in aquatic products collected from seven provinces

1.0×10^{-6} ;若以中位数污染水平计算,福建省的CR值为 1.79×10^{-6} ,大于 1.0×10^{-6} ,其余5个省份的CR值均小于 1.0×10^{-6} ;若以最大污染水平计算,除了辽宁省,其余5个省份的CR值均大于 1.0×10^{-6} 。

3 讨论

有研究表明^[15],物种的营养级、栖息环境、摄食习惯、健康状况和脂肪含量直接影响其对持久性有机污染物的富集,MIHATS等^[16]报道了海水鱼中指示性PCBs含量明显高于其他鱼类,与本研究结果一致。本研究中蟹类 Σ_7 PCBs含量最高,螃蟹是一种典型的底栖生物,常常以高污染的腐烂有机物质为食,螃蟹还拥有表面积相对较大的鳃,可以不断地将污染物从水和悬浮颗粒转移到鳃表面,随后通过血液遍布全身^[17]。虾类和贝类的指示性PCBs含量最低,可能一是与它们脂肪含量较低有关,二是贝类主要以海藻类或浮游类生物为食,是食物链中靠底端的生物,而虾类一般生存或养殖在水质较好的环境中,且对PCBs的代谢和消除速度比其他一些水产品更快^[18]。

整体而言,我国各省份间水产品中PCBs组成特征相似, Σ_7 PCBs含量差异不大,但少数物种不同的采集地点浓度差别较大,如小龙虾中 Σ_7 PCBs的

含量最小值来自湖北,最大值来自江苏;鳊鱼中 Σ_7 PCBs的含量最小值也是来自湖北,最大值来自广东;牡蛎中 Σ_7 PCBs的含量最小值来自辽宁,最大值来自浙江。这种差异可能与样品来自不同地区有关,在一定程度上反映了当地水产品受污染的状况。有研究表明,华东地区的PCBs污染水平普遍高于中西部地区,可能与华东地区的经济水平和人类活动强度有关^[19]。江浙地区经济发展优于湖北,浙江曾经是我国废旧电子产品拆解的集中地,广东沿海地区加工业、电子电器制造业发达,而这些正是环境中PCBs的主要来源。

将本研究水产品中PCBs的含量与世界其他地区进行比较发现,本研究PCBs的含量水平远低于荷兰莱茵河、斯海尔德河、印度海得拉巴、美国查尔斯顿港和希腊克里特岛所报道的PCBs含量水平^[20-24]。与中国历史数据比较,本研究PCBs的含量水平与8年前基本相当^[25],但低于20年前的研究数据^[26],这可能与我国PCBs的生产使用年限较短及PCBs的自然降解有关。虽然各个研究的对象、采样时间、检测方法和PCBs同系物的数量可能各不相同,但在某种程度上,比较结果可以反映目前我国水产品中PCBs污染水平。

由于中国第五次总膳食研究中没有山东省水产类消费量数据,因此本研究只对6个省份的日均暴露量水平进行分析。第四次总膳食研究中,水产类指示性PCBs摄入量贡献率最高的省份是福建省^[27],与本研究结果一致。另外湖北、福建、辽宁3个省份中位数水平下的暴露量 $[0.09, 0.90, 0.05 \text{ ng}/(\text{kg} \cdot \text{d})]$ 均低于第四次总膳食研究的数据 $[0.61, 2.63, 0.23 \text{ ng}/(\text{kg} \cdot \text{d})]$ ^[27]。在第六次总膳食研究中,裴紫薇等^[28]评估了6种指示性PCBs的膳食暴露量,且与之前的总膳食研究结果进行了比较,也发现我国地区指示性PCBs的膳食暴露量水平有整体下降的趋势,证明自2005年环境法规的实施^[19],对我国食品中指示性PCBs含量的控制起到了效果。EFSA^[29]报道了欧洲地区食品中6种指示性PCBs的摄入量范围为 $4.3 \sim 25.7 \text{ ng}/(\text{kg} \cdot \text{d})$,其中水产类的贡献率约30%~70%。荷兰国立公共卫生与环境研究院提出了

表3 6个省份水产品健康风险值

Table 3 Health risk value of aquatic products in 6 provinces

地区	ADD/[mg/(kg·d)]			HQ			CR		
	P ₅₀	Min	Max	P ₅₀	Min	Max	P ₅₀	Min	Max
广东	0.13×10^{-6}	0.09×10^{-7}	0.80×10^{-6}	0.67×10^{-2}	0.05×10^{-2}	0.40×10^{-1}	0.27×10^{-6}	0.02×10^{-6}	1.61×10^{-6}
江苏	0.35×10^{-6}	0.41×10^{-7}	2.15×10^{-6}	1.75×10^{-2}	0.21×10^{-2}	1.07×10^{-1}	0.70×10^{-6}	0.08×10^{-6}	4.29×10^{-6}
浙江	0.25×10^{-6}	0.25×10^{-7}	2.40×10^{-6}	1.23×10^{-2}	0.12×10^{-2}	1.20×10^{-1}	0.49×10^{-6}	0.05×10^{-6}	4.79×10^{-6}
湖北	0.09×10^{-6}	0.03×10^{-7}	0.70×10^{-6}	0.42×10^{-2}	0.01×10^{-2}	0.35×10^{-1}	0.17×10^{-6}	0.05×10^{-7}	1.41×10^{-6}
福建	0.90×10^{-6}	0.18×10^{-7}	2.22×10^{-6}	4.48×10^{-2}	0.09×10^{-2}	1.11×10^{-1}	1.79×10^{-6}	0.04×10^{-6}	4.44×10^{-6}
辽宁	0.05×10^{-6}	0.02×10^{-7}	0.20×10^{-6}	0.24×10^{-2}	0.01×10^{-2}	0.10×10^{-1}	0.10×10^{-6}	0.04×10^{-7}	0.40×10^{-6}

6种指示性PCBs摄入量限值为 $10\text{ ng}/(\text{kg}\cdot\text{d})^{[30]}$,本研究日均暴露量总体水平低于欧洲等发达国家,也低于该摄入量限值,说明我国居民通过水产品摄入PCBs的暴露水平较低。

非致癌风险的评估结果中,HQ值均远小于1,表明各省居民通过摄入当地水产品的非致癌风险较低。致癌风险的评估结果表明:中位数污染水平下,福建省的CR值超过了 1.0×10^{-6} ,提示福建省居民通过摄入当地水产品可能存在一定风险;最大污染水平下,有5个省份的CR值均超过了 1.0×10^{-6} ,提示当地居民摄入高污染水产品可能存在一定的风险,应尽量避免食用高污染食品。

健康风险评估中由于资料和数据方面的原因,存在如下几方面的不确定性:(1)本研究是基于第五次中国总膳食研究(2009—2013年)中水产品的消费量数据,与实际消费量可能存在一定差异;(2)由于采样量受限,采样分布于水产品主产区和主要水产种类,不能完全代表中国的实际污染水平,后续多氯联苯监测工作中将进一步考虑采样地区的分布和代表性;(3)本研究涉及的PCBs仅为7种指示性PCBs,可能低估了健康风险评估的结果。

4 结论

本研究通过分析中国7个代表性省份水产品中指示性PCBs的污染水平,发现我国水产品中 Σ_7 PCBs的含量水平较低,未超过国标中对水产品指示性PCBs的最新修订值,且不同物种间存在显著差异。通过指纹特征和主成分分析,发现PCB153和PCB138是主要特征污染物,各省份有相似的污染特征,可能主要来源于环境本底。通过暴露量评估,中国居民通过水产品膳食摄入指示性PCBs的暴露水平较低。健康风险评估结果表明,6个省份水产品中 Σ_7 PCBs的非致癌风险较低;中位数污染水平下,福建省水产品中指示性PCBs的致癌风险值超过了 1.0×10^{-6} ,可能存在一定风险。

参考文献

- [1] BULLERT AJ, DOORN JA, STEVENS HE, et al. The Effects of Polychlorinated Biphenyl Exposure During Adolescence on the Nervous System: A Comprehensive Review [J]. *Chem Res Toxicol*, 2021, 34(9): 1948-1952.
- [2] RAFFETTI E, DONATO F, SPEZIANI F, et al. Polychlorinated biphenyls (PCBs) exposure and cardiovascular, endocrine and metabolic diseases: A population-based cohort study in a North Italian highly polluted area [J]. *Environ Int*, 2018, 120: 215-222.
- [3] LYALL K, CROEN LA, SJODIN A, et al. Polychlorinated Biphenyl and Organochlorine Pesticide Concentrations in Maternal Mid-Pregnancy Serum Samples: Association with Autism Spectrum Disorder and Intellectual Disability [J]. *Environ Health Perspect*, 2017, 125(3): 474-480.
- [4] KOUALI M, TOMKIEWICZ C, CANO-SANCHO G, et al. Environmental chemicals, breast cancer progression and drug resistance [J]. *Environmental Health*, 2020, 19(1): 117.
- [5] SU G, LIU X, GAO Z, et al. Dietary intake of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) from fish and meat by residents of Nanjing, China [J]. *Environment International*, 2012, 42: 138-143.
- [6] 国家统计局.中国统计年鉴[EB/OL].(2023-01-01)[2023-07-01]. <http://www.stats.gov.cn/sj/ndsj/2022/indexch.htm>. National Bureau of Statistics. China Statistical Yearbook [EB/OL]. (2023-01-01) [2023-07-01]. <http://www.stats.gov.cn/sj/ndsj/2022/indexch.htm>.
- [7] 中华人民共和国国家卫生健康委员会.食品安全国家标准食品中污染物限量:GB 2762—2022[S].北京:中国标准出版社,2022. National Health Commission of the People's Republic of China. National food safety standard-Maximum levels of contaminants in foods: GB 2762—2022 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2022.
- [8] 中华人民共和国国家卫生健康委员会.化学物质环境健康风险评估技术指南WS/T 777—2021[S].北京:中国标准出版社,2021. National Health Commission of the People's Republic of China. Technical guide for environmental health risk assessment of chemical exposure [S]. Beijing: Standards Press of China, 2021.
- [9] 吴永宁,赵云峰,李敬光.第五次中国总膳食研究[M].北京:科学出版社,2018:245-292. WU Y N, ZHAO Y F, LI J G. The Fifth China Total Diet Study [M]. Beijing: Science Press, 2018: 245-292.
- [10] 秦海娇,史秋月,王永强,等.长江中下游典型湖泊鱼体中多环芳烃(PAHs)的污染特征及风险评价[J].*环境化学*, 2024, 43(12): 1-11. QIN H J, SHI Q Y, WANG Y Q, et al. Pollution characteristics and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in fish of typical lakes in the middle and lower reaches of the Yangtze River [J]. *Environmental Chemistry*, 2024, 43(12): 1-11.
- [11] 赵秀阁,段小丽.中国人群暴露参数手册(成人卷)[M].北京:中国环境出版社,2014:53-55. ZHAO X G, DUAN X L. Highlights of the Chinese exposure factors handbook (adults) [M]. Beijing: China Environment Press, 2014: 53-55.
- [12] 张亚萍,吕占禄,王先良,等.电子垃圾拆解废渣-土壤-蔬菜中多氯联苯污染特征与健康风险评估[J].*环境科学*, 2022, 43(1): 490-499. ZHANG Y P, LYU Z L, WANG X L, et al. Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Polychlorinated Biphenyls in E-waste Disposal Residue-Soil-Vegetable [J]. *Environmental Chemistry*, 2022, 43(1): 490-499.
- [13] 马丽莎,谢文平,田斐,等.广东沿海养殖牡蛎中多氯联苯残留水平及人体饮食暴露风险评估[J].*南方水产科学*, 2021, 17

- (2):11-19.
- MA L S, XIE W P, TIAN F, et al. Bioaccumulation and human health risk assessment of polychlorinated biphenyls (PCBs) in farmed oysters along Guangdong coast [J]. *Southern Fisheries Science*, 2019, 17(2): 11-19.
- [14] 蔡俊秀. 莆田市沿海海产品多氯联苯的污染特征及风险分析[J]. *武汉轻工大学学报*, 2021, 40(1): 12-21+29.
- CAI J X. Pollution characteristics and risk analysis of PCBs in coastal seafood of Putian City [J]. *Journal of Wuhan University of Light Industry*, 2021, 40(1): 12-21+29.
- [15] 徐丽君. 持久性含氯有机污染物在鱼体中的分布、富集和迁移规律[D]. 长沙:中南大学, 2023.
- XU L J. Distribution, Enrichment and Migration of Persistent Chlorinated Organic Pollutants in Fish [D]. Changsha: Central South University, 2023.
- [16] MIHATS D, MOCHE W, PREAN M, et al. Dietary exposure to non-dioxin-like PCBs of different population groups in Austria [J]. *Chemosphere*, 2015, 126: 53-59.
- [17] HABIBULLAH-AL-MAMUN M, AHMED MK, ISLAM MS, et al. Polychlorinated biphenyls (PCBs) in commonly consumed seafood from the coastal area of Bangladesh: occurrence, distribution, and human health implications[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, 26(2): 1355-1369.
- [18] GOERKE H, WEBER K. Species-specific elimination of polychlorinated biphenyls in estuarine animals and its impact on residue patterns[J]. *Marine Environmental Research*, 2001, 51(2): 131-149.
- [19] ZHU M, YUAN Y, YIN H, et al. Environmental contamination and human exposure of polychlorinated biphenyls (PCBs) in China: A review[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 805: 150270.
- [20] HOOGENBOOM L R, KOTTERMAN J M, NIEUWENHUIZEN H M, et al. Dioxins, PCBs and heavy metals in Chinese mitten crabs from Dutch rivers and lakes[J]. *Chemosphere*, 2015, 123: 150270.
- [21] VAN A E, COVACI A, BLUST R, et al. Persistent organic pollutants in the Scheldt estuary: environmental distribution and bioaccumulation [J]. *Environment International*, 2012, 48: 17-27.
- [22] FAIR PA, WHITE ND, WOLF B, et al. Persistent organic pollutants in fish from Charleston Harbor and tributaries, South Carolina, United States: A risk assessment [J]. *Environmental Research*, 2018, 167: 598-613.
- [23] AHMED MN, SINHA SN, VEMULA SR, et al. Accumulation of polychlorinated biphenyls in fish and assessment of dietary exposure: a study in Hyderabad City, India [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2016, 188(2): 94.
- [24] RENIERI EA, GOUMEENOU M, KARDONSKY DA, et al. Indicator PCBs in farmed and wild fish in Greece - Risk assessment for the Greek population [J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2019, 127: 260-269.
- [25] PAN H, GENG J, QIN Y, et al. PCBs and OCPs in fish along coastal fisheries in China: Distribution and health risk assessment [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2016, 111(1-2): 483-487.
- [26] YANG N, MATSUDA M, KAWANO M, et al. PCBs and organochlorine pesticides (OCPs) in edible fish and shellfish from China [J]. *Chemosphere*, 2006, 63(8): 1342-1352.
- [27] 吴永宁, 李筱薇. 第四次中国总膳食研究 [M]. 北京: 化学工业出版社, 2015: 163-385.
- WU Y N, LI X W. The Fourth China Total Diet Study [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2015: 163-385.
- [28] 裴紫薇, 李玉白, 张小燕, 等. 我国居民指示性多氯联苯膳食暴露分析 [J]. *中国食品卫生杂志*, 2022, 34(5): 962-967.
- PEI Z W, LI Y B, ZHANG X Y, et al. Exposure assessment of dietary intake for marker polychlorinated biphenyls in China [J]. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2022, 34(5): 962-967.
- [29] EFSA. Update of the monitoring of levels of dioxins and PCBs in food and feed [J]. *EFSA Journal*, 2012, 10(7): 2832.
- [30] BAARS A J, THEELEN R M C, JANSSEN P J C M, et al. Reevaluation of human-toxicological maximum permissible risk level [R]. RIVM Report, 2001, 40: 296-297.