

我国黄海沿岸贝类重金属污染状况及健康风险评价

许道艳, 张悦*, 于彩芬, 邢庆会, 周胜玲, 李诗菲, 刘长安 (国家海洋环境监测中心, 辽宁大连 116023)

摘要 分析我国黄海 26 个地区贝类生物体中 Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 污染状况, 并利用美国环境保护署提出的人体健康风险评价模型进行健康风险评价。结果显示, 依据《食品安全国家标准食品中污染物限量》(GB 2762—2017) 和《无公害食品 水产品中有毒有害物质限量》(NY 5073—2006) 的污染物限量要求, 仅庙岛群岛近岸海域无机砷含量超标。黄海 26 个地区 Cd、As 污染健康风险等级均不超过 III 级, 远低于美国环境保护署要求的最大可接受风险值, Cd、As 污染健康风险强度可以接受。Hg、Pb、Cr、Cu 污染风险值均远低于荷兰建设和环境部规定的可忽略风险水平, 风险等级符合健康风险评价 I 级标准, 健康风险强度可以忽略。

关键词 贝类; 重金属污染; 健康风险; 黄海沿岸

中图分类号 X 820.4 **文献标识码** A

文章编号 0517-6611(2022)09-0065-07

doi: 10.3969/j.issn.0517-6611.2022.09.017

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



Heavy Metal Pollution Status and Health Risk Assessment of Shellfish along the Coast of Huanghai Sea

XU Dao-yan, ZHANG Yue, YU Cai-fen et al (National Marine Environmental Monitoring Center, Dalian, Liaoning 116023)

Abstract The pollution status of Hg, Cd, Pb, Cr, As, and Cu in shellfish organisms in 26 regions of Huanghai Sea was analyzed, and health risk assessment was carried out using the human health risk assessment model proposed by the US Environmental Protection Agency (EPA). The results showed that according to the contaminant limit requirements of "National Food Safety Standard Limits of Contaminants in Foods" (GB 2762-2017) and "Limits of Toxic and Hazardous Substances in Pollution-Free Food and Aquatic Products" (NY 5073-2006), only the inorganic As contents of shellfish in Miaodao islands exceeded the standard. The health risk level of Cd and As pollution in the 26 regions of the Huanghai Sea does not exceed level III, which was far lower than the maximum acceptable risk value required by the US Environmental Protection Agency. The health risk intensity of Cd and As pollution was acceptable. The pollution risk values of Hg, Pb, Cr, and Cu were far lower than the negligible risk level stipulated by the Netherlands Ministry of Construction and Environment, the risk grade was the level I standard of health risk assessment, and the health risk intensity was negligible.

Key words Shellfish; Heavy metal pollution; Health risks; Coast of Huanghai Sea

随着我国沿海人类开发活动的不断加强, 海洋环境中的化学污染物不断累积, 其中, 重金属是一类具有严重生理毒性的化学物质, 海洋中重金属来源分为天然来源和人为来源, 天然来源主要包括地壳释放、岩石风化与侵蚀、海底火山喷发及热液活动, 人为来源主要包括各种人类活动产生的重金属直接或间接进入海洋环境, 引起溶解态重金属污染的主要为人为来源^[1], 这些污染物通过物理作用和化学作用在水体中不断迁移转化, 或被海洋生物吸收后随食物链积累与放大, 并最终对人体健康产生影响, 因此, 海产品中重金属污染人体健康风险评价也日益得到重视。贝类在海洋中分布广、适应性强, 且对多种污染物特别是重金属具有较强的富集能力, 因而, 许多国家把贝类生物作为海洋污染程度的重要指示物, 其体内重金属生物累积及食品安全问题越来越受到人们的关注^[2]。《国家环境保护“十三五”环境与健康工作规划》中要求“掌握我国重点地区、重点行业主要污染物人群暴露水平和健康影响基本情况, 建立环境与健康监测、调查和风险评估制度及标准体系, 评估污染物对公众健康和生态环境的危害和影响程度”。

黄海是一个半封闭型浅海, 是世界上接受泥沙量最多的陆缘海, 由于黄海沿岸人口集中, 工农业发达, 加之受人类活

动影响较为严重的黄河等大量河川流入黄海, 从而深受来自陆域活动的影响, 2011 年就曾报道我国黄海遭化工污染严重^[3], 2013 年英国《卫报》、澳大利亚《悉尼先驱晨报》报道受农业污水、工厂排放废弃物等影响, 大规模藻华入侵, 黄海变绿, 我国污染严重^[4]。黄海已面临生态脆弱、受污染破坏极为严重的问题。该研究通过开展黄海 26 个地区贝类 Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 污染健康风险评价, 及时掌握我国黄海环境污染对人群健康的风险强度, 是政府从源头预防、加强黄海环境污染主动管理的工作基础, 对于提高黄海污染治理水平、保障黄海生态有效管理及食品安全、促进健康中国建设及生态文明建设具有重要现实意义。

1 资料与方法

1.1 数据来源 选取我国黄海 26 个地区的贝类海产品开展了 Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 污染状况分析及健康风险评价, 海产品中 Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 含量数据来自国家海洋环境监测中心 2018 年全国海洋环境监测数据。所有贝类样品于 2018 年 8 月采集。贝类种类主要为菲律宾蛤仔 (*Ruditapes philippinarum*)、青蛤 (*Cyclina sinensis*)、牡蛎 (*Ostrea gigas*)、缢蛏 (*Sinonovacula constricta*) 和厚壳贻贝 (*Mytilus coruscus*) 等。样品的采集、贮运、样品的预处理和分析测定方法均按照《海洋监测规范》(GB 17378—2007) 相关规定进行。样品经自来水和三蒸水清洗干净后(测定 Pb 的贝类样品去除内脏), 用滤纸吸干表面, 称取一定质量放入烘干箱中, 100 °C 下烘至恒重, 测定含水率, 同时制成干样, 冷藏保存并尽快分析。具体分析方法见表 1。

该研究为综合比较黄海各地区贝类重金属污染的人体

基金项目 国家环境保护近岸海域生态环境重点实验室基金项目(201816); 国家重点研发计划项目子课题(2018YFC-1406401)。

作者简介 许道艳(1978—), 女, 吉林集安人, 正高级工程师, 硕士, 从事海洋保护区监测与评价研究。* 通信作者, 工程师, 硕士, 从事海洋保护区监测与评价研究。

收稿日期 2021-07-26; **修回日期** 2021-09-03

健康风险强度,各地区的贝类重金属含量取该地区全部贝类重金属含量的平均值,人体健康风险强度根据贝类重金属含量的平均值进行计算。

表 1 重金属含量的测定方法

Table 1 Detection methods of heavy metal contents

项目 Item	分析仪器 Analysis instrument	分析方法 Analysis method	方法依据 Method basis
Hg	冷原子测 Hg 仪	冷原子吸收分光光度法	GB 17378.6—2007
Cd	无火焰原子吸收分光光度计	无火焰原子吸收分光光度法	GB 17378.6—2007
Pb	无火焰原子吸收分光光度计	无火焰原子吸收分光光度法	GB 17378.6—2007
Cr	分光光度计	二苯碳酰二肼分光光度法	GB 17378.6—2007
As	原子荧光光度计	原子荧光法	GB 17378.6—2007
Cu	无火焰原子吸收分光光度计	无火焰原子吸收分光光度法	GB 17378.6—2007

1.2 健康风险评价方法 根据美国环境保护署推荐的评价模型,分为致癌化学物质健康风险评价和非致癌化学物质健康风险评价^[5]。

致癌化学物质健康风险评价模型:

$$R_i^c = [1 - \exp(-D_i \times q_i)] / L \quad (1)$$

式中, R_i^c 为致癌化学物质 i 通过食入途径的平均个人致癌年风险,无量纲; D_i 为致癌化学物质 i 通过食入途径的单位体重日均暴露剂量 (mg/kg); q_i 为致癌化学物质 i 经食入途径的致癌强度系数(表 2); L 为人的平均寿命,根据《2018 年我国卫生健康事业发展统计公报》^[6] 公布数据,到 2018 年,我国人均寿命为 77 岁,因此该研究 L 取 77。

表 2 致癌化学物质强度系数

Table 2 Intensity coefficients of carcinogenic chemicals

化学物质 Chemicals	致癌强度系数 Carcinogenic intensity coefficient/(mg/(kg·d))	暴露途径 Exposure route	资料来源 Data source
Cd	6.1	口服	Chemical databases ^[9]
As	1.5	口服	IRIS ^[10]

非致癌化学物质健康风险评价模型:

$$R_i^n = D_i \times 10^{-6} / RfD_i \times L \quad (2)$$

式中, R_i^n 为非致癌化学物质 i 通过食入途径所致健康危害的平均个人年风险,无量纲; D_i 为非致癌化学物质 i 通过食入途径的单位体重日均暴露剂量 (mg/kg); RfD_i 为非致癌化学物质 i 经食入途径进入人体并且不会对人体造成不利影响的化学物质的最高参考剂量(表 3); L 为人的平均寿命,根据《2018 年我国卫生健康事业发展统计公报》^[6] 公布数据,到 2018 年,我国人均寿命为 77 岁,因此该研究 L 取 77; 10^{-6} 为 USEPA 标准调整数值。

表 3 非致癌化学物质危害参考剂量

Table 3 Non-carcinogenic chemicals hazard reference metrology

化学物质 Chemicals	危害参考剂量 Hazard reference metrology/(mg/(kg·d))	暴露途径 Exposure route	资料来源 Data source
Hg	3.0×10^{-4}	口服	IRIS ^[10]
Cu	3.7×10^{-2}	口服	IRIS ^[10]
Pb	1.4×10^{-3}	口服	IRIS ^[10]
Cr	3.0×10^{-3}	口服	IRIS ^[10]

化学物质通过食入途径的单位体重日均暴露剂量评价

模型:

$$D_i = Q_i \times C_i \times \alpha / W \quad (3)$$

式中, D_i 为致癌化学物质/非致癌化学物质 i 通过食入途径的单位体重日均暴露剂量 (mg/kg); Q_i 为成年人每天消费的某种食物的量,2015 年我国居民每天平均摄入水产品量为 $0.0286 \text{ kg}^{[7]}$; C_i 为致癌化学物质/非致癌化学物质 i 在某种食物中的含量 (mg/kg); α 为致癌化学物质/非致癌化学物质经口摄途径的人体吸收率,该研究默认为 1; W 为人的平均体重,《中国居民营养与慢性病状况报告(2015)》^[8] 中显示,我国成年男性平均体重为 66.2 kg,成年女性为 57.3 kg,取成年男女平均值为 61.75 kg。

1.3 致癌化学物质强度系数及非致癌化学物质参考剂量 该研究选取了美国环境保护署综合风险信息系统 (IRIS) 和加利福尼亚 OEHHA 数据库 (Chemical databases) 提供的强度系数和参考剂量。有毒化学物质致癌性评价见表 4。

表 4 有毒化学物质致癌性评价

Table 4 Evaluation of carcinogenicity of toxic chemicals

化学物质 Chemicals	危害描述 Hazard description	证据权重 Weight of evidence	资料来源 Data source
Cd	肺癌、前列腺癌	B1	Chemical databases ^[9]
As	肺癌、肝癌、膀胱癌、肾癌	A	IRIS ^[10]
Pb	肾癌(动物试验)	B2	IRIS ^[10]
Cr ⁶⁺	肺癌(吸入途径)	A	IRIS ^[10]
Hg	非致癌	D	IRIS ^[10]
Cu	非致癌	C	IRIS ^[10]

注:A. 确定为致癌物;B1. 有少量的人体患癌的证据;B2. 动物致癌证据充分,但人体致癌证据不足;C. 可能为致癌物;D. 没有被列为人体致癌性物质

Note: A. Determined to be a carcinogen; B1. There is a small amount of evidence of human cancer; B2. There is sufficient evidence of carcinogenicity in animals, but insufficient evidence of carcinogenicity in humans; C. May be a carcinogen; D. Not classified as a human carcinogen

在人体健康风险评价中,由于 Cr 的致癌途径为吸入式,而该研究集中在海产品食入途径,因此,将 Cr 归为非致癌物质;Pb 的致癌证据由于只在动物试验中,人体致癌证据不足,因此,将 Pb 归为非致癌物质。该研究中,将 Cd 和 As 列为致癌物质,而 Hg、Cu、Pb、Cr 列为非致癌物质。致癌化学物质强度系数、非致癌化学物质危害参考剂量分别见表 2 和表 3。

1.4 健康风险评价标准 国际上有关机构推荐的健康风险评价标准,即社会公众成员最大可接受风险水平和可忽略风险水平见表 5,该研究的健康风险评价标准分为 6 个等级(表 6)。

表 5 健康风险评价标准^[5]

Table 5 Criteria for health risk assessment

序号 No.	机构 Organization	年最大可接受风险水平 Annual maximum acceptable risk level	年可忽略风险水平 Annual negligible risk level
1	瑞典环境保护局	1.0×10^{-6}	—
2	荷兰建设和环境部	1.0×10^{-6}	1.0×10^{-8}
3	英国皇家协会	1.0×10^{-6}	1.0×10^{-7}
4	美国环境保护署	1.0×10^{-4}	—
5	国际辐射防护委员会	5.0×10^{-5}	—

2 结果与分析

2.1 贝类生物体中重金属含量 经分析图 1~6 可知,黄海

海域 26 个地区贝类生物体 Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 含量分别为 $0.29 \times 10^{-2} \sim 0.10$ 、 $0.02 \sim 1.20$ 、 $0.02 \sim 0.26$ 、 $0.06 \sim 1.68$ 、 $0.13 \times 10^{-2} \sim 2.25$ 、 $0.39 \times 10^{-2} \sim 5.16$ mg/kg。将同一地区贝类生物体中 Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 含量进行比较,26 个地区中有 16 个地区(占比 61.54%)的贝类生物体中 As 含量较高,8 个地区(占比 30.77%)Cu 含量较高,As 含量较高可能与贝

表 6 健康风险评价标准分级^[5]

Table 6 Classification of health risk assessment criteria

风险等级 Risk grade	R	可接受程度 Acceptable
I	$R \leq 10^{-7}$	可以忽略
II	$10^{-7} < R \leq 10^{-6}$	几乎可以忽略
III	$10^{-6} < R \leq 5.0 \times 10^{-5}$	可以接受
IV	$5.0 \times 10^{-5} < R \leq 10^{-4}$	已达警戒状态,应采取预防措施
V	$10^{-4} < R \leq 10^{-3}$	应进行一定的治理
VI	$> 10^{-3}$	不可接受,必须立即进行治理

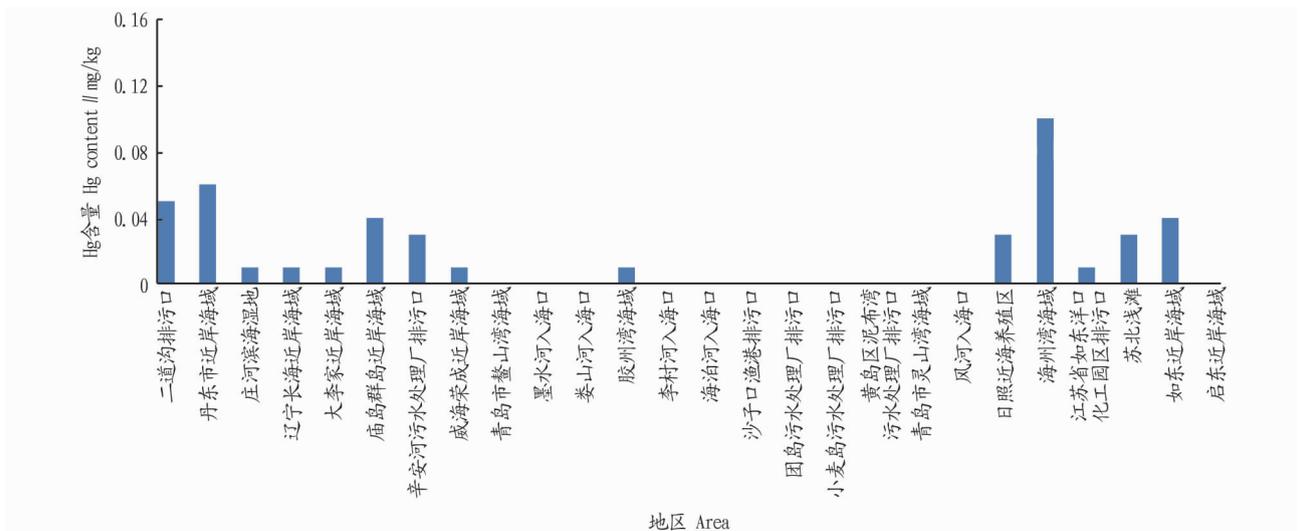


图 1 黄海海域 26 个地区贝类生物体 Hg 含量

Fig. 1 Hg content of shellfish organisms in 26 areas of Huanghai Sea

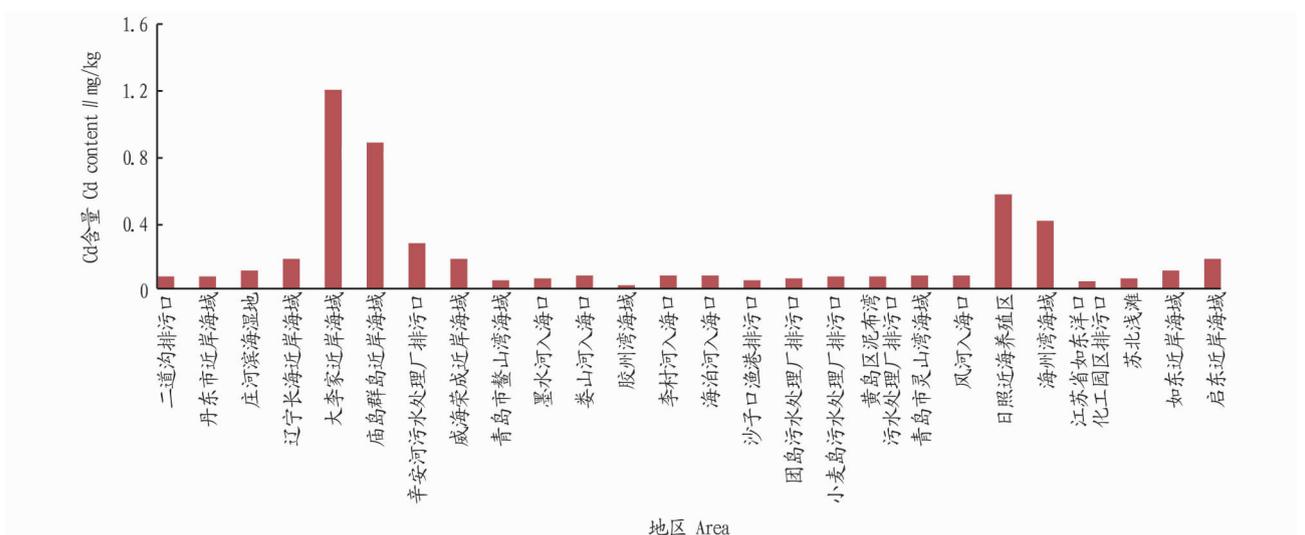


图 2 黄海海域 26 个地区贝类生物体 Cd 含量

Fig. 2 Cd content of shellfish organisms in 26 areas of Huanghai Sea

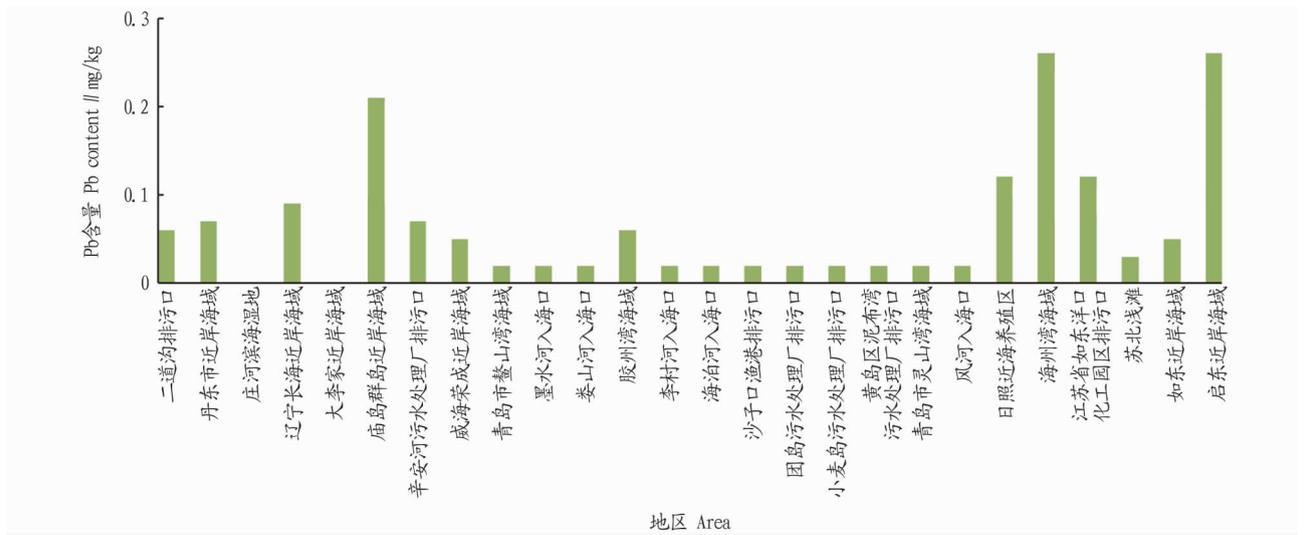


图3 黄淮海域26个地区贝类生物体Pb含量

Fig. 3 Pb content of shellfish organisms in 26 areas of Huanghai Sea

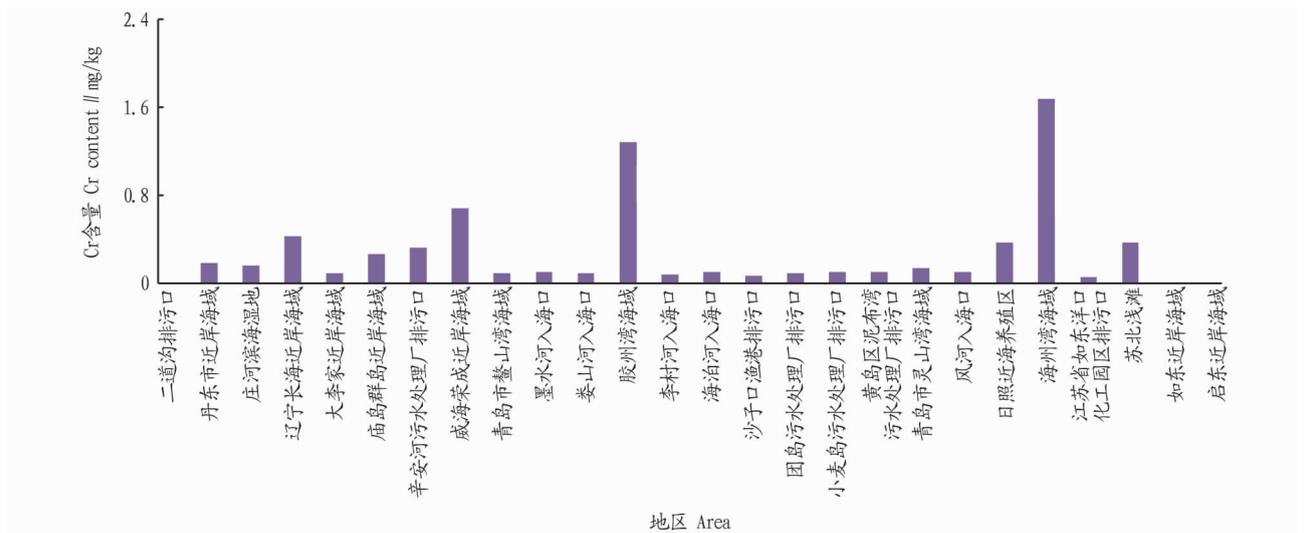


图4 黄淮海域26个地区贝类生物体Cr含量

Fig. 4 Cr content of shellfish organisms in 26 areas of Huanghai Sea

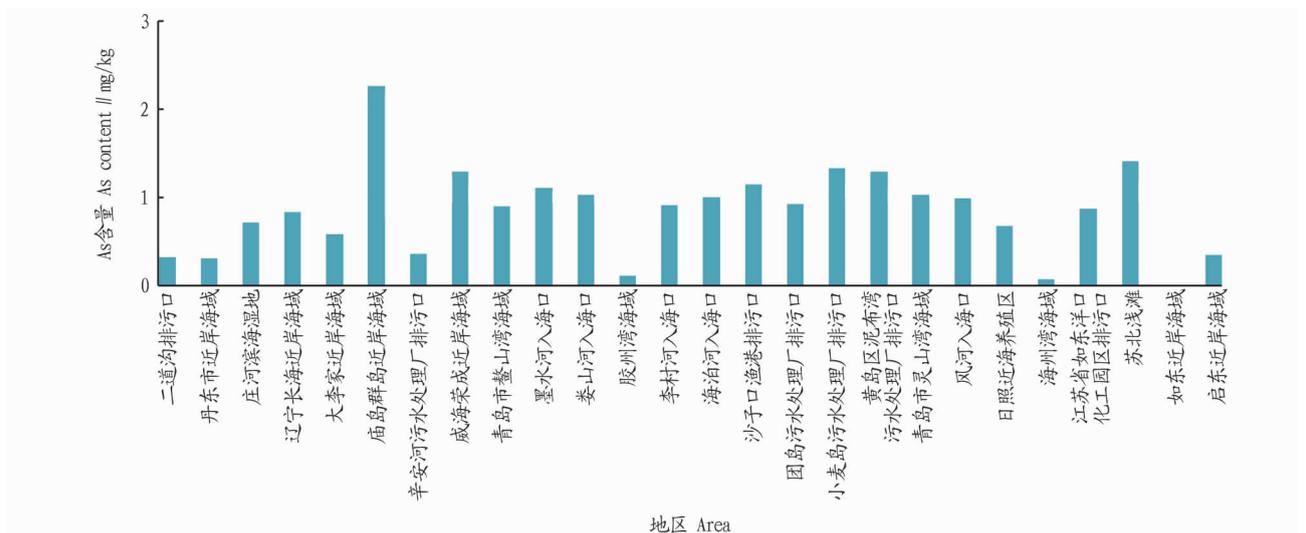


图5 黄淮海域26个地区贝类生物体As含量

Fig. 5 As content of shellfish organisms in 26 areas of Huanghai Sea

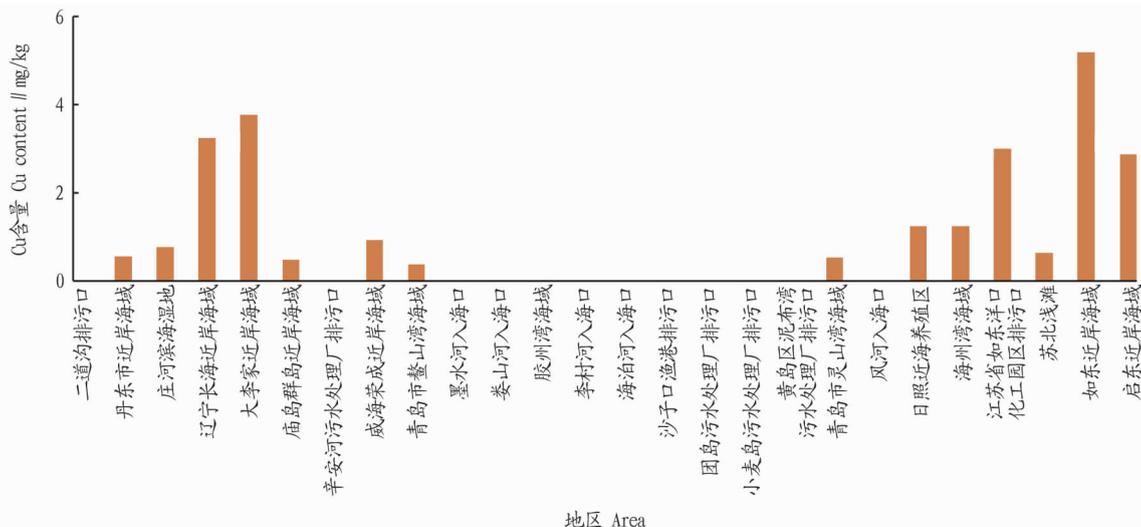


图6 黄海海域 26 个地区贝类生物体 Cu 含量

Fig. 6 Cu content of shellfish organisms in 26 areas of Huanghai Sea

类的高砷富集能力有关^[11], Cu 含量较高可能是因为 Cu 是海洋生物生命必需的元素, 贝类血液运载的主要是含 Cu 的血蓝蛋白, 因此, Cu 优先被贝类选择性吸收^[12]。21 个地区(占比 80.77%) 贝类生物体中甲基汞含量最低, 可能是由于贝类栖息环境中沉积物的 Hg 含量较低, 海洋环境中的 Hg 主要存在于沉积物中^[13], 2017 年监测结果显示, 我国黄海海域沉积物中 Hg 含量符合第一类海洋沉积物质量标准^[14], 余骏等^[15]研究贝类中 Hg 的生物富集情况发现, 其全组织中总汞和甲基

汞含量与对应沉积物中总汞和甲基汞含量均呈显著正相关。

根据《食品安全国家标准食品中污染物限量》(GB 2762—2017) 及《无公害食品 水产品中有毒有害物质限量》(NY 5073—2006) 中贝类水产品的污染物限量要求(表 7), 黄海 26 个地区贝类生物体中甲基汞、镉、铅、铬、铜的含量均不超标; 该研究中的贝类 As 含量为总砷含量, 毒性较强的无机砷含量占总砷含量的 5%~30%^[16], 如果按 30% 来计算, 仅庙岛群岛近岸海域无机砷含量超标, 为 0.68 mg/kg。

表 7 贝类生物体中 Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 限量标准

Table 7 Limit standards of Hg, Cd, Pb, Cr, As, Cu in shellfish organisms

mg/kg

序号 No.	标准名称 Standard name	甲基汞 Methyl mercury	Cd	Pb	Cr	无机砷 Inorganic arsenic	Cu
1	食品安全国家标准食品中污染物限量 GB 2762—2017	0.5	2.0	1.5	2.0	0.5	—
2	无公害食品 水产品中有毒有害物质限量 NY 5073—2006	0.5	1.0	1.0	—	0.5	50

2.2 重金属污染健康风险 国际癌症研究中心(IARC)认为, Cd、As 是人类的致癌物。Cd 及其化合物均有一定的毒性, Cd 对胃肠黏膜有刺激作用, 可引起肺或肾脏的损害, 长期暴露于高镉环境, 可引起腹泻、休克、肺气肿和肾功能障碍等症状, 严重可导致肺癌、前列腺癌及肾癌。As 具有神经毒性, 长期暴露可观察到中枢神经系统抑制症状, 包括头痛、嗜睡、烦躁、记忆力下降等, 严重可导致肺癌。一般认为口摄暴露途径中, Hg、Pb、Cr、Cu 为非致癌化学物。Hg 可以通过呼吸道、消化道和皮肤进入人体, 在体内积累至一定量时会对人体造成危害, 无机汞转化成的甲基汞具有高神经毒性、致癌性、心血管毒性、生殖毒性、免疫系统效应和肾脏毒性等, 能给人健康带来严重危害^[17]。Pb 是一种慢性和累积性毒物, 主要从消化道进入人体, 对机体的损伤呈多系统性、多器官性, 能对神经、造血、消化、泌尿、生殖、心血管、内分泌、免疫等系统及生长发育造成不利影响^[18]。一般认为 Cr⁶⁺ 通过呼吸途径对人体产生的毒性较强, 可导致肺癌, 长期通过口摄途径暴露于高铬环境, 可造成慢性中毒, 刺激和腐蚀

消化道, 引起恶心、呕吐、腹痛等症状。Cu 是生命所必需的微量元素, 但过量的 Cu 会造成人体呼吸系统、消化系统和内分泌系统病变, 出现咳嗽、胸痛、呕吐、腹泻、非分泌性脑垂体腺瘤等症状。

2018 年我国黄海 26 个地区贝类 Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 健康风险评价结果显示(表 8), 致癌化学物 Cd 污染风险值(R_c^i) 在 $6.57 \times 10^{-7} \sim 4.38 \times 10^{-5}$, As 污染风险值(R_c^i) 在 $1.20 \times 10^{-8} \sim 2.03 \times 10^{-5}$, 尽管该研究中黄海海域大部分地区 Cd、As 含量符合食品安全要求, 但仍大于瑞典环境保护局、荷兰建设和环境部及英国皇家协会等机构要求的最大可接受风险值(1.0×10^{-6}), 该风险水平相较于美国环境保护署和国际辐射防护委员会要求的最大可接受风险水平(表 5)更为严格。根据本国国情, 该研究选用国际辐射防护委员会要求的最大可接受风险值(5.0×10^{-5}) 作为健康风险评价 III 级标准, 因此, 尽管还有一小部分地区的贝类 Cd、As 含量超标, 但 26 个地区 Cd、As 污染健康风险等级均不超过 III 级, 远低于美国环境保护署要求的最大可接受风险值(1.0×10^{-4}), Cd、As 污染健

康风险强度可以接受。非致癌化学物 Hg、Pb、Cr 和 Cu 污染风险值 (R_i^n) 分别在 $5.10 \times 10^{-11} \sim 1.90 \times 10^{-9}$ 、 $6.64 \times 10^{-11} \sim 1.11 \times 10^{-9}$ 、 $1.14 \times 10^{-10} \sim 3.36 \times 10^{-9}$ 和 $6.40 \times 10^{-13} \sim 8.39 \times 10^{-10}$, 均远低于荷兰建设和环境部规定的可忽略风险水平 (1.0×10^{-8}), 风险等级均符合健康风险评价 I 级标准, Hg、Pb、Cr、Cu 污染口摄途径健康风险可以忽略。

表 8 黄海海域 26 个地区贝类 Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 污染健康风险

Table 8 Health risks of Hg, Cd, Pb, Cr, As, Cu pollution in shellfish in 26 areas of Huanghai Sea

序号 No.	地区 Area	Hg		Cd		Pb	
		R_i^n	等级 Level	R_i^n	等级 Level	R_i^n	等级 Level
1	二道沟排污口邻近海域	9.34×10^{-10}	I	2.46×10^{-6}	III	2.58×10^{-10}	I
2	丹东市近岸海域	1.10×10^{-9}	I	2.40×10^{-6}	III	3.01×10^{-10}	I
3	庄河滨海湿地	1.13×10^{-10}	I	4.04×10^{-6}	III	—	I
4	辽宁长海近岸海域	2.95×10^{-10}	I	6.75×10^{-6}	III	3.78×10^{-10}	I
5	大李家近岸海域	2.49×10^{-10}	I	4.38×10^{-5}	III	—	I
6	庙岛群岛近岸海域	8.78×10^{-10}	I	3.21×10^{-5}	III	8.81×10^{-10}	I
7	辛安河污水处理厂排污口邻近海域	6.20×10^{-10}	I	1.00×10^{-5}	III	2.92×10^{-10}	I
8	威海荣成近岸海域	2.34×10^{-10}	I	6.58×10^{-6}	III	2.01×10^{-10}	I
9	青岛市鳌山湾海域	6.09×10^{-11}	I	1.92×10^{-6}	III	7.28×10^{-11}	I
10	墨水河入海口	6.31×10^{-11}	I	2.37×10^{-6}	III	9.06×10^{-11}	I
11	姜山河入海口	8.54×10^{-11}	I	2.88×10^{-6}	III	9.17×10^{-11}	I
12	胶州湾海域	1.10×10^{-10}	I	6.57×10^{-7}	II	2.73×10^{-10}	I
13	李村河入海口	6.07×10^{-11}	I	2.77×10^{-6}	III	8.33×10^{-11}	I
14	海泊河入海口	6.49×10^{-11}	I	2.79×10^{-6}	III	8.90×10^{-11}	I
15	沙子口渔港排污口邻近海域	5.10×10^{-11}	I	1.89×10^{-6}	III	6.64×10^{-11}	I
16	团岛污水处理厂排污口邻近海域	7.27×10^{-11}	I	2.33×10^{-6}	III	8.61×10^{-11}	I
17	小麦岛污水处理厂排污口邻近海域	9.12×10^{-11}	I	2.47×10^{-6}	III	7.86×10^{-11}	I
18	黄岛区泥布湾污水处理厂排污口邻近海域	5.73×10^{-11}	I	2.54×10^{-6}	III	8.63×10^{-11}	I
19	青岛市灵山湾海域	5.75×10^{-11}	I	2.90×10^{-6}	III	1.00×10^{-10}	I
20	风河入海口	8.20×10^{-11}	I	2.81×10^{-6}	III	8.01×10^{-11}	I
21	日照近海养殖区	5.55×10^{-10}	I	2.08×10^{-5}	III	5.16×10^{-10}	I
22	海州湾海域	1.90×10^{-9}	I	1.50×10^{-5}	III	1.11×10^{-9}	I
23	江苏省如东洋口化工园区排污口邻近海域	1.87×10^{-10}	I	1.28×10^{-6}	II	5.30×10^{-10}	I
24	苏北浅滩	6.58×10^{-10}	I	2.05×10^{-6}	III	1.29×10^{-10}	I
25	如东近岸海域	7.12×10^{-10}	I	4.04×10^{-6}	III	1.98×10^{-10}	I
26	启东近岸海域	—	I	6.57×10^{-6}	III	1.10×10^{-9}	I

序号 No.	地区 Area	Cr		As		Cu	
		R_i^n	等级 Level	R_i^n	等级 Level	R_i^n	等级 Level
1	二道沟排污口邻近海域	—	I	2.89×10^{-6}	III	—	I
2	丹东市近岸海域	3.88×10^{-10}	I	2.71×10^{-6}	III	9.16×10^{-11}	I
3	庄河滨海湿地	3.25×10^{-10}	I	6.40×10^{-6}	III	1.22×10^{-10}	I
4	辽宁长海近岸海域	8.69×10^{-10}	I	7.45×10^{-6}	III	5.25×10^{-10}	I
5	大李家近岸海域	1.73×10^{-10}	I	5.24×10^{-6}	III	6.11×10^{-10}	I
6	庙岛群岛近岸海域	5.31×10^{-10}	I	2.03×10^{-5}	III	7.41×10^{-11}	I
7	辛安河污水处理厂排污口邻近海域	6.32×10^{-10}	I	3.18×10^{-6}	III	—	I
8	威海荣成近岸海域	1.36×10^{-9}	I	1.16×10^{-5}	III	1.49×10^{-10}	I
9	青岛市鳌山湾海域	1.90×10^{-10}	I	8.06×10^{-6}	III	6.05×10^{-11}	I
10	墨水河入海口	1.92×10^{-10}	I	9.90×10^{-6}	III	—	I
11	姜山河入海口	1.76×10^{-10}	I	9.22×10^{-6}	III	—	I
12	胶州湾海域	2.57×10^{-9}	I	1.02×10^{-6}	II	6.40×10^{-13}	I
13	李村河入海口	1.64×10^{-10}	I	8.14×10^{-6}	III	—	I
14	海泊河入海口	1.97×10^{-10}	I	8.96×10^{-6}	III	—	I
15	沙子口渔港排污口邻近海域	1.43×10^{-10}	I	1.03×10^{-5}	III	—	I
16	团岛污水处理厂排污口邻近海域	1.73×10^{-10}	I	8.28×10^{-6}	III	—	I
17	小麦岛污水处理厂排污口邻近海域	2.03×10^{-10}	I	1.19×10^{-5}	III	—	I
18	黄岛区泥布湾污水处理厂排污口邻近海域	1.99×10^{-10}	I	1.16×10^{-5}	III	—	I
19	青岛市灵山湾海域	2.74×10^{-10}	I	9.20×10^{-6}	III	8.57×10^{-11}	I
20	风河入海口	1.98×10^{-10}	I	8.86×10^{-6}	III	—	I
21	日照近海养殖区	7.35×10^{-10}	I	6.07×10^{-6}	III	2.02×10^{-10}	I
22	海州湾海域	3.36×10^{-9}	I	5.32×10^{-7}	II	2.01×10^{-10}	I
23	江苏省如东洋口化工园区排污口邻近海域	1.14×10^{-10}	I	7.82×10^{-6}	III	4.88×10^{-10}	I
24	苏北浅滩	7.50×10^{-10}	I	1.26×10^{-5}	III	1.02×10^{-10}	I
25	如东近岸海域	—	I	1.20×10^{-8}	I	8.39×10^{-10}	I
26	启东近岸海域	—	I	3.09×10^{-6}	III	4.63×10^{-10}	I

注：“—”表示因贝类生物体内该种元素含量极低，未能检出，因此不能用模型进行评价，但风险等级默认为 I 级

Note: “—” indicates that the content of this element in shellfish organisms is extremely low and cannot be detected, so the model cannot be used for evaluation, but the default risk level is level I

近几年,我国不断加强黄海海域污染治理力度,部分沿海省市开展了海洋生态文明建设,重点强化水污染防治,综合整治入海河流及入海排污口,逐步减少陆源污染排放。如江苏盐城制定了《盐城市海洋生态文明建设行动方案(2016—2020年)》《盐城市水污染防治工作方案》,为盐城海洋生态环境保护、海洋资源节约利用、逐步实现“水净、岸绿、滩洁、物丰”的海洋生态文明建设目标提供基础保障。随着黄海海域污染治理力度逐年加强,重金属污染状况逐渐改善,2017年监测结果显示,我国黄海海域海水中 Hg、Cd、Pb、Cr⁶⁺、As 含量均优于二类海水水质标准限值^[19],沉积物质量“良好”的监测站位比例为 100%^[14],该研究的评价结果也反映了目前我国黄海海域 Hg、Pb、Cr、Cu 污染风险极低,Cd、As 污染风险处于可接受状态。

该研究评价方法中人群平均体重、平均寿命以及海产品平均每日摄入量等参数赋值均采用我国已发布的中国人均水平,非致癌有毒化学物危害参考计量和致癌有毒化学物致癌强度系数采用国际限定标准,风险等级评价采用国际有关机构推荐的风险评价限量阈值,可能不完全适用于该研究中我国黄海 26 个地区的实际情况,从而在评价结果上可能存在一定误差。此外,Hg、Cd、Pb、Cr、As、Cu 污染的口摄暴露途径人体吸收率默认为 100%吸收,可能会导致评价风险值偏高,以上的不确定性因素可能均会导致评价结果不够准确,仍需进一步研究。

3 结论

(1) 黄海 26 个地区贝类 Hg 含量在 $0.29 \times 10^{-2} \sim 0.10 \text{ mg/kg}$,Cd 含量在 $0.02 \sim 1.20 \text{ mg/kg}$,Pb 含量在 $0.02 \sim 0.26 \text{ mg/kg}$,Cr 含量在 $0.06 \sim 1.68 \text{ mg/kg}$,As 含量在 $0.13 \times 10^{-2} \sim 2.25 \text{ mg/kg}$,Cu 含量在 $0.39 \times 10^{-2} \sim 5.16 \text{ mg/kg}$ 。依据《食品安全国家标准食品中污染物限量》(GB 2762—2017)和《无公害食品 水产品中有毒有害物质限量》(NY 5073—2006)的污染物限量要求,仅庙岛群岛近岸海域无机砷含量超标。

(2) 我国黄海海域致癌化学物 Cd 污染风险值在 $6.57 \times 10^{-7} \sim 4.38 \times 10^{-5}$,As 污染风险值在 $1.20 \times 10^{-8} \sim 2.03 \times 10^{-5}$,26 个地区 Cd、As 污染健康风险等级均不超过Ⅲ级,远低于美国

环境保护署要求的最大可接受风险值,Cd、As 污染健康风险强度可以接受。非致癌化学物 Hg、Pb、Cr 和 Cu 污染风险值分别在 $5.10 \times 10^{-11} \sim 1.90 \times 10^{-9}$ 、 $6.64 \times 10^{-11} \sim 1.11 \times 10^{-9}$ 、 $1.14 \times 10^{-10} \sim 3.36 \times 10^{-9}$ 和 $6.40 \times 10^{-13} \sim 8.39 \times 10^{-10}$,均远低于荷兰建设和环境部规定的可忽略风险水平,风险等级均符合健康风险评价Ⅰ级标准,健康风险强度可以忽略。

参考文献

- [1] 王毅. 钦州近岸海域及其入海口重金属的分布、来源及污染风险评价 [D]. 南宁: 广西大学, 2018: 3-4.
- [2] 席英玉, 林娇, 林永青, 等. 福建闽南沿海养殖僧帽牡蛎中汞和砷的时空分布特征及风险评价 [J]. 环境化学, 2017, 36(5): 1009-1016.
- [3] 孟登科. 大海死了: 中国黄海遭化工污染严重! [EB/OL]. (2011-04-01) [2021-03-17]. <https://news.qq.com/a/20110401/000717.htm>.
- [4] 张欣. 外媒: “黄海变绿”凸显中国污染严重 [EB/OL]. (2013-07-06) [2021-03-17]. <http://news.sohu.com/20130706/n380874353.shtml>.
- [5] 张悦, 陈鹏飞, 刘长安, 等. 环渤海地区 Hg、As、Cr、Pb 污染健康风险评估 [J]. 海洋环境科学, 2012, 31(1): 67-70.
- [6] 中华人民共和国国家卫生健康委员会规划发展与信息化司. 2018 年我国卫生健康事业发展统计公报 [R]. 中华人民共和国国家卫生健康委员会, 2018.
- [7] 中国营养学会. 中国居民膳食指南 2016 [M]. 北京: 人民卫生出版社, 2016: 271.
- [8] 中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会. 中国居民营养与慢性病状况报告 (2015) [R]. 中华人民共和国国家卫生健康委员会, 2015.
- [9] OEIHA. Chemical Databases [EB/OL]. [2021-03-17]. <https://oeiha.ca.gov/library/chemical-databases>.
- [10] EPA. Integrated Risk Information System [EB/OL]. [2021-03-17]. <https://www.epa.gov/iris>.
- [11] 张伟, 黄良民. 海洋生物体内砷含量及其形态研究进展 [J]. 生态毒理学学报, 2019, 14(1): 41-53.
- [12] 孙珊, 赵玉庭, 王立明, 等. 山东省主要贝类养殖区重金属环境状况及贝类安全风险分析 [J]. 渔业科学进展, 2017, 38(4): 118-125.
- [13] 申雪娇, 张健宁, 刘小莉, 等. 汞对海洋双壳贝类毒性效应研究进展 [J]. 山东农业科学, 2018, 50(3): 148-153.
- [14] 国家海洋局. 2017 年中国海洋环境状况公报 [R]. 中华人民共和国自然资源部, 2017.
- [15] 余骏, 李玉成, 张学胜, 等. 巢湖重要河口湿地贝类中汞的生物富集研究 [J]. 生物学杂志, 2017, 34(1): 44-47, 93.
- [16] 王春旭, 李生志, 许荣玉. 环境中砷的存在形态研究 [J]. 环境科学, 1993, 14(4): 53-57, 94.
- [17] 程和发, 高旭, 罗晴. 大米汞污染与摄食大米甲基汞暴露研究进展 [J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(8): 1665-1676.
- [18] 张泰然, 王维. 铅污染及其微生物修复技术的研究进展 [J]. 微生物前沿, 2014(3): 1-7.
- [19] 中华人民共和国生态环境部监测司. 2017 年中国近岸海域环境质量公报 [R]. 中华人民共和国生态环境部, 2017.