

DOI: 10.11758/yykxjz.20160910001

http://www.yykxjz.cn/

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*

孙 珊 赵玉庭 王立明 由丽萍 陶慧敏 谷伟丽 张秀珍^①

(山东省海洋资源与环境研究院 山东省海洋生态修复重点实验室 烟台 264006)

摘要 依据 2014 年 8 月对山东省近岸贝类养殖区的调查资料,研究了养殖区海水、沉积物和生物体中 6 种重金属的含量及富集情况,并对贝类养殖区进行质量及生态风险评价。结果显示,海水中重金属含量从高到低为 As、Cu、Cr、Pb、Cd 和 Hg;沉积物中重金属含量从高到低为 Cr、Pb、Cu、As、Cd 和 Hg;贝类体中重金属含量从高到低为 Cu、As、Cd、Cr、Pb 和 Hg。生态环境质量评价结果表明,养殖区海水中重金属含量均符合 II 类海水水质标准;沉积物重金属含量均符合 I 类海洋沉积物质量标准;贝类体中 Hg、Cd、Pb 和 Cr 均符合《食品安全国家标准食品中污染物限量》,Cu 符合 I 类海洋生物质量标准。贝类对重金属的富集能力从大到小为 Cu、Cd、Hg、Pb、Cr 和 As,调查海域贝类体中的 Cu、Cd 富集系数较高,其他重金属富集系数相对较低。重金属质量安全风险分析表明,贝类体中 Cd、Pb、As、Cr 和 Hg 的膳食暴露量较低,处于安全范围内,但建议去除内脏后食用。

关键词 贝类养殖区;重金属;环境评价;富集系数;贝类安全风险

中图分类号 X145 **文献标识码** A **文章编号** 2095-9869(2017)04-0118-08

我国是海水养殖大国,贝类是海水养殖的主要产品,2014 年我国海水贝类养殖面积为 $1.53 \times 10^6 \text{ hm}^2$,占海水养殖面积的 66.4%;海水养殖贝类产量达 1316.55 万 t,占海水养殖总量的 72.6% (农业部渔业渔政管理局,2015)。海水中的重金属浓度较低,但来源广、残毒时间长,容易通过食物链被生物富集,进而对人体健康构成极大危害(丘耀文等,2005;宋永刚等,2016)。贝类(软体动物)在海洋水体中的分布广、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(Phillips *et al*, 1993),其体内重金属生物富集问题以及食用安全问题越来越受到人们的重视。目前,关于重金属的含量状况和毒性效应研究较

多,但多集中在不同介质环境中的分布规律(毛天宇等,2009;郭兰等,2014;徐艳东等,2015a、b;郑懿珉等,2015;周斌等,2013;蓝先洪等,2014;林曼曼等,2014)以及实验室暴露实验等(王志铮等,2007;徐彦等,2013;李诗逸等,2015;于庆云等,2013;严俊贤等,2014;张宜奎等,2011;Adjei-Boateng *et al*, 2011)。本研究在山东沿海 8 个主要贝类养殖区通过对海水、沉积物、贝类生物体的同步调查,分析和评价养殖环境和贝类生物体中重金属的含量水平;探讨贝类生物体对于环境中重金属的富集状况以及相关关系;评估特定人群食用贝类的健康风险,为贝类养殖区重金属风险分析与评价提供科学依据,为提高海水养殖区贝类质量安全水平、保障消费者的健康安全提供一定的理

* 山东省现代农业产业技术体系贝类创新团队专项基金(SDAIT-14-08)、山东省科技发展计划项目(2014GSF117030)和山东省自然科学基金青年基金项目(ZR2014DQ018)共同资助 [This work was supported by Shandong Province Modern Agricultural Technology System Shellfish Innovation Team Special Foundation (SDAIT-14-08), Shandong Province Science and Technology development Plans (2014GSF117030), and Shandong Province Natural Science Foundation for Young (ZR2014DQ018)]. 孙 珊, E-mail: sunsan18@163.com

^① 通讯作者:张秀珍,研究员, E-mail: zxz0535501@126.com

收稿日期:2016-09-10, 收修改稿日期:2016-10-26

论与技术支持。

1 材料与方法

1.1 采样点设置

山东省海水贝类养殖业发达,养殖面积达 25 万 hm^2 , 贝类养殖广布沿海各地。根据山东沿岸海域贝类养殖区域分布现状,选取 8 个具有代表性的养殖区域,分别为滨州无棣贝类养殖区、东营新户贝类养殖区、潍坊滨海贝类养殖区、烟台莱州贝类养殖区、威海北海贝类养殖区、威海乳山贝类养殖区、烟台海阳贝类养殖区和日照两城贝类养殖区。各养殖区均匀设置 7 个水质站位、3 个沉积物站位和 1 个生物质量站位(图 1)。

1.2 样品采集与分析

所有样品于 2014 年 8 月采集。各养殖区分别采集 7 个水样、3 个沉积物样和 1 个生物样。8 个养殖区代表性养殖贝类生物样分别为文蛤(*Meretrix meretrix* L.)、四角蛤(*Macra veneriformis*)、菲律宾蛤仔(*Ruditapes philippinarum*)、海湾扇贝(*Argopecten irradians*)、栉孔扇贝(*Chlamys farreri*)、牡蛎(*Ostrea gigas*)、中国蛤蜊

(*Macra chinensis*)和紫贻贝(*Mytilus edulis*)。各类型样品的采集、贮运、样品的预处理和分析测定方法均按照《海洋监测规范》(海洋监测规范, 2007)相关规定进行,其中,生物样品测定的是整个贝类体中 Cd、Pb、Cu、Cr、总汞和总砷含量。

1.3 评价方法

采用单因子评价模式对山东省近岸养殖区海水、沉积物和生物体内 6 种重金属进行评价,计算公式为:

$$P_i = C_i/S_i \quad (1)$$

式中, P_i 为单项污染物 i 的污染指数; C_i 为单项污染物 i 的含量; S_i 为单项污染物 i 的评价标准。评价结果根据《海洋监测规范》(GB 17378-2007)(海洋监测规范, 2007)中划分的等级标准, 即当 $P_i \leq 0.5$, 表明未受该因子污染, 当 $0.5 < P_i \leq 1.0$, 表明受到该因子污染, 当 $P_i > 1.0$, 表明已受到该因子污染。

生物样中重金属含量评价采用《食品安全国家标准食品中污染物限量》(GB 2762-2012)(食品安全国家标准食品中污染物限量, 2012)和《海洋生物质量》(GB 18421-2001)(海洋生物质量, 2001)标准, 生物样中重金属含量评价具体标准限量列于表 1。



图 1 调查海域

Fig.1 Surveyed areas in Shandong coast

表1 海洋生物体中部分重金属污染评价标准

Tab.1 Standard of heavy mental evaluation in marine organisms (mg/kg)

元素 Elements	甲基汞 Methyl Mercury	镉 Cd	铅 Pb	铜 Cu	无机砷 Inorganic Arsenic	铬 Cr
标准值 Standard	0.5 ^a	2.0 ^a	1.5 ^a	10 ^b	0.5 ^a	2.0 ^a

a: GB 2762-2012; b: GB 18421-2001

通常用生物浓缩系数(BCF)来表示生物对环境中重金属的富集能力, 计算公式(戴树桂, 1997)为:

$$BCF = C_b / C_e \quad (2)$$

式中, C_b 为某种元素或难降解物质在生物体中的质量分数; C_e 为某种元素或难降解物质在机体水体环境中的质量分数。

通过膳食暴露量对其食用安全性风险进行评估, 计算公式(王增焕等, 2010)为:

$$E = \frac{C \times Ir}{B_w} \quad (3)$$

式中, E 为元素的膳食暴露量($\mu\text{g}/\text{kg}$), C 为贝类中重金属含量(mg/kg); Ir 为日膳食量; B_w 为人体质量。

2 结果与讨论

2.1 海水中重金属含量及状况评价

山东省近岸养殖区海水中重金属含量及评价结果

如表2所示, 海水中重金属含量从高到低为As、Cu、Cr、Pb、Cd、Hg。其中, 渤海湾南部滨州无棣、东营新户海域 Hg 含量较高, 潍坊滨海海域较低; 莱州湾潍坊滨海、烟台海阳海域 Cd 含量较高, 威海北海、威海乳山海域较低; 山东日照两城、威海乳山海域 Pb 含量较高, 滨州无棣、东营新户海域较低; 山东半岛南部的日照两城海域 Cu 含量最高, 其他海域相差不大; 莱州湾潍坊滨海海域 As 含量最高, 滨州无棣、东营新户海域较低; 渤海湾南部东营新户海域、山东半岛东南部烟台海阳海域 Cr 含量较高, 山东半岛东南部威海北海、潍坊滨海海域较低。

2014年调查结果与渤海湾1996-2005年10年重金属含量平均值相比, Pb含量有所降低, 其他重金属含量相差不大(毛天宇等, 2009)。养殖区海水中重金属含量均符合II类海水水质标准。除滨州无棣海域Hg污染指数偏高(>0.5), 存在一定的超标风险外, 其他海域各类重金属污染指数低, 超标风险较小, 水质状况良好。

2.2 沉积物中重金属含量及状况评价

山东省近岸养殖区沉积物中重金属含量及评价结果如表3所示, 沉积物中重金属含量从高到低为Cr、Pb、Cu、As、Cd、Hg。莱州湾潍坊滨海、烟台莱州海域Hg含量较高, 滨州无棣、东营新户海域较低; 渤海湾南部滨州无棣、东营新户海域Cd含量较

表2 海水中重金属含量及状况评价($\mu\text{g}/\text{L}$)Tab.2 The concentrations of heavy metals in seawater and its assessment ($\mu\text{g}/\text{L}$)

海域 Area		Hg	Cd	Pb	Cu	As	Cr
滨州无棣 Wudi Binzhou	平均值 Average P_i	0.1130±0.0090 0.57	0.396±0.045 0.08	0.421±0.050 0.08	1.75±0.28 0.18	2.10±1.34 0.07	3.060±0.39 0.031
东营新户 Xinhu Dongying	平均值 Average P_i	0.0859±0.0185 0.43	0.283±0.060 0.06	0.408±0.053 0.08	3.38±0.39 0.34	1.36±0.36 0.05	5.240±0.410 0.052
潍坊滨海 Binhai Weifang	平均值 Average P_i	0.0183±0.0103 0.09	0.708±0.065 0.14	0.708±0.135 0.14	2.47±0.13 0.25	6.38±0.64 0.21	0.419±0.060 0.004
烟台莱州 Laizhou Yantai	平均值 Average P_i	0.0445±0.0088 0.22	0.396±0.032 0.08	0.666±0.141 0.13	2.70±0.50 0.27	4.32±1.02 0.14	1.980±0.300 0.020
威海北海 Beihai Weihai	平均值 Average P_i	0.0411±0.0063 0.21	0.131±0.046 0.03	0.807±0.255 0.16	2.46±0.46 0.25	1.52±0.37 0.05	0.651±0.119 0.007
威海乳山 Rushan Weihai	平均值 Average P_i	0.0369±0.0059 0.18	0.129±0.033 0.03	0.899±0.266 0.18	2.17±0.45 0.22	2.04±0.44 0.07	0.659±0.134 0.007
烟台海阳 Haiyang Yantai	平均值 Average P_i	0.0457±0.0456 0.23	0.540±0.074 0.11	0.742±0.123 0.15	2.64±0.32 0.26	2.85±1.43 0.10	4.050±0.430 0.041
日照两城 Liangcheng Rizhao	平均值 Average P_i	0.0241±0.0010 0.12	0.286±0.014 0.06	0.841±0.093 0.17	4.23±0.12 0.42	5.26±0.08 0.18	2.180±0.060 0.022

表3 沉积物中重金属含量及状况评价(mg/kg)

Tab.3 The concentrations of heavy metals in sediments and its assessment (mg/kg)

海域 Area		Hg	Cd	Pb	Cu	As	Cr
滨州无棣	平均值 Average	0.0183±0.0044	0.380±0.010	12.10±1.39	4.30±0.60	5.21±2.09	13.60±1.35
Wudi Binzhou	P_i	0.092	0.76	0.20	0.12	0.26	0.17
东营新户	平均值 Average	0.0037±0.0062	0.317±0.087	27.50±5.38	14.20±3.71	7.22±0.42	30.50±6.10
Xinhu Dongying	P_i	0.019	0.63	0.46	0.41	0.36	0.38
潍坊滨海	平均值 Average	0.1060±0.1040	0.087±0.032	8.25±2.13	2.32±0.63	8.79±4.09	21.60±1.76
Binhai Weifang	P_i	0.53	0.17	0.14	0.07	0.44	0.27
烟台莱州	平均值 Average	0.1580±0.0440	0.288±0.115	20.10±0.80	16.20±4.20	4.20±0.51	26.20±2.62
Laizhou Yantai	P_i	0.79	0.58	0.34	0.46	0.21	0.33
威海北海	平均值 Average	0.0373±0.0013	0.163±0.047	15.70±1.70	20.70±1.10	11.80±0.80	29.40±4.90
Beihai Weihai	P_i	0.19	0.33	0.26	0.59	0.59	0.37
威海乳山	平均值 Average	0.0365±0.0012	0.153±0.006	13.00±1.70	22.60±0.60	13.00±0.60	55.70±11.50
Rushan Weihai	P_i	0.18	0.31	0.22	0.64	0.65	0.70
烟台海阳	平均值 Average	0.1110±0.0130	0.270±0.015	30.70±2.39	14.10±1.22	1.68±0.06	24.30±3.87
Haiyang Yantai	P_i	0.56	0.54	0.51	0.40	0.084	0.30
日照两城	平均值 Average	0.0263±0.0006	0.242±0.002	11.00±0.20	10.20±0.20	7.01±0.09	24.50±0.20
Liangcheng Rizhao	P_i	0.13	0.48	0.18	0.29	0.35	0.31

高, 潍坊滨海海域最低; 山东半岛东南部的烟台海阳海域 Pb 含量最高, 潍坊滨海海域含量最低; 山东半岛东南部的威海北海、威海乳山海域 Cu、As 含量较高, 莱州湾潍坊滨海、烟台海阳海域较低; 山东半岛东南部乳山海域 Cr 含量最高, 滨州无棣海域最低, 其他海域相差不大。2014 年调查结果与 2012、2013 年山东近岸海域表层沉积物重金属含量相差不大(徐艳东等, 2015), 与福建罗源湾(蔡清海等, 2007)及九龙江口(王伟力等, 2009)相比, As 和 Hg 含量相差不大, Cr、Pb 和 Cu 含量较低, Cd 与罗源湾 Cd 相比较高, 与九龙江口 Cd 相比较低。养殖区沉积物中重金属均符合 I 类海洋沉积物质量标准。Hg(烟台莱州、烟台海阳、潍坊滨海)、Cd(滨州无棣、烟台莱州、烟台海阳)、Pb(烟台海阳)、Cu(威海乳山、威海北海)、As(威海乳山、威海北海)、Cr(威海乳山)污染指数偏高(>0.5), 存在一定的超标风险。

2.3 生物体中重金属含量及状况评价

山东省近岸养殖区贝类体中重金属含量及评价结果如表4所示, 贝类体中重金属含量从高到低为Cu、As、Cd、Cr、Pb、Hg。我国海洋生物质量标准对海洋贝类中Cu含量的 I 类标准为10 mg/kg; 食品安全国家标准对双壳类水产品中Pb、Cd、甲基汞、无机砷和Cr 5种重金属的限量规定分别为1.5、2.0、0.5、0.5和2.0 mg/kg。山东省近岸养殖区贝类体Cu符合 I 类海洋生物质量标准; Cd、Pb和Cr符合《食品安全国家

标准食品中污染物限量》(2012)标准。本次调查测定的是总汞含量, 总汞含量符合我国食品安全国家标准中甲基汞限量标准, 因此, 贝类体中甲基汞含量亦符合此限量标准。本次调查测定的是总砷含量, 而毒性较强的无机砷含量仅占总砷含量的5%–30%(王春旭等, 1983), 如果按无机砷占总砷含量的30%来计算, 本次调查贝类体内As污染指数均<1, 符合《食品安全国家标准食品中污染物限量》中无机砷限量标准(2012)。

2.4 贝类对重金属的富集状况

生物体中的重金属与海水中重金属含量的比值可以反映生物体对海水中重金属的富集能力。重金属在贝类体内的富集是通过贝类滤食海水中以离子状态存在的重金属或吸附在有机体和有机颗粒表面的重金属形成的(孙维萍等, 2010)。山东省近岸养殖区贝类对重金属的富集状况如表5所示, 贝类对重金属的富集能力从大到小为Cu、Cd、Hg、Pb、Cr、As, Cu、Cd 富集系数较高, 其他重金属富集系数较低。

山东省近岸养殖区贝类对重金属的富集能力与贝类体内重金属含量高低并不一致。贝类体内重金属含量一方面与生物种类及其生理特性相关, 另一方面也受海水中重金属含量水平的影响。贝类体内 Cu 含量最高, 是因为 Cu 是海洋生物生命必需的元素, 生物体对必需元素的主动吸收能力十分明显(Sun *et al.*, 2004)。贝类血液运载的主要是含 Cu 的血蓝蛋白, 因

表4 生物体中重金属含量及评价状况(mg/kg)

Tab.4 The concentrations of heavy metals in organisms and its assessment (mg/kg)

种类 Species		Hg	Cd	Pb	Cu	As	Cr
文蛤 <i>Meretrix meretrix</i> L.	含量 Concentration	0.015	0.135	0.066	1.13	0.151	0.104
	P_i	0.030	0.068	0.044	0.113	—	0.052
四角蛤 <i>Macra veneriformis</i>	含量 Concentration	0.014	0.747	0.739	4.976	0.820	0.0747
	P_i	0.027	0.374	0.493	0.498	—	0.037
菲律宾蛤仔 <i>Ruditapes philippinarum</i>	含量 Concentration	0.009	0.213	0.099	0.550	0.350	0.188
	P_i	0.018	0.107	0.066	0.055	—	0.094
海湾扇贝 <i>Argopecten irradians</i>	含量 Concentration	0.043	0.875	0.076	1.220	0.639	0.195
	P_i	0.086	0.438	0.051	0.122	—	0.098
栉孔扇贝 <i>Chlamys farreri</i>	含量 Concentration	0.023	0.110	0.060	6.080	0.160	0.440
	P_i	0.047	0.055	0.040	0.608	—	0.220
牡蛎 <i>Ostrea gigas</i>	含量 Concentration	0.024	0.130	0.150	7.980	0.130	0.430
	P_i	0.048	0.065	0.100	0.798	—	0.215
中国蛤蜊 <i>Macra chinensis</i>	含量 Concentration	0.039	0.454	0.087	2.360	0.547	0.140
	P_i	0.078	0.227	0.058	0.236	—	0.070
紫贻贝 <i>Mytilus edulis</i>	含量 Concentration	0.017	0.032	0.092	1.240	0.409	0.139
	P_i	0.033	0.016	0.061	0.124	—	0.070
平均值 Average	含量 Concentration	0.023	0.337	0.171	3.190	0.401	0.214
	P_i	0.046	0.169	0.114	0.319	—	0.107

表5 贝类对重金属的富集系数

Tab.5 Enrichment coefficients of heavy metals by shellfish

种类 Species	Hg	Cd	Pb	Cu	As	Cr
文蛤 <i>Meretrix meretrix</i> L.	135	341	157	646	72	34
四角蛤 <i>Macra veneriformis</i>	159	2640	1811	1472	603	14
菲律宾蛤仔 <i>Ruditapes philippinarum</i>	486	301	140	223	55	449
海湾扇贝 <i>Argopecten irradians</i>	971	2210	115	452	148	98
栉孔扇贝 <i>Chlamys farreri</i>	567	840	74	2472	105	676
牡蛎 <i>Ostrea gigas</i>	656	1008	167	3677	64	653
中国蛤蜊 <i>Macra chinensis</i>	856	841	118	894	192	35
紫贻贝 <i>Mytilus edulis</i>	689	112	109	293	78	64
平均值 Average	565	1036	336	1266	165	253

而, Cu 优先被贝类选择性地吸收, 其在贝类体内的同化速率明显高于其他重金属元素, 而贝类对重金属的排出率大致相同, 导致贝类体内的 Cu 含量明显高于其他重金属含量(王文雄等, 2004); 同时, 海水中 Cu 含量较高, 贝类体内 Cu 含量最高也可能受海水中 Cu 含量影响所致(孙维萍等, 2010)。贝类体内 Cd 含量也相当高, 仅次于 Cu、As 的含量, 其富集系数仅次于 Cu。研究发现, Cd 经常作为“替代性”营养盐型重金属元素被生物所吸收(孙维萍等, 2010)。Cd 具有与生命必需元素—Ca 相似的地球化学性质, 大部分

贝类直接吸收溶解在海水中的石灰质作为制造贝壳原料的同时, 对 Cd 的“替代吸收”也加强, 从而使贝类组织中的 Cd 含量也相应提高(翁焕新等, 1996)。以此推测, Cd 还有可能在人体中进一步富集。因此, 环境中的 Cd 对贝类食品安全的威胁更大, 应该对此引起足够的重视。同时, 不同贝类对重金属的富集也存在种间差异, 四角蛤对 Cd 和 Pb 具有较强的富集作用, 牡蛎对 Cu 和 Cr 具有较强的富集作用, 海湾扇贝对 Hg 具有较强的富集作用, 部分结果与庄树宏(1998)研究结果不一致, 这可能与本次测定统计数据量较小有关。

Kenage(1980)研究认为, 只有当浓缩系数超过 1000 时, 才被认为具有潜在的生物累积危害。由表 5 可见, 调查海域贝类体内 Cu、Cd 的浓缩系数超过了 1000, 富集较为明显。其他 4 种重金属 Hg、Pb、Cr 和 As 在贝类体内的浓缩系数都不高, 在 10^2 数量级范围内, 说明这 4 种重金属在研究海域贝类体内的蓄积并不严重。

2.5 重金属质量安全风险分析

世界卫生组织/联合国粮食和农业组织(WHO/FAO)的食品添加剂联合专家委员会(JECFA)推荐的 Cd、Pb、As、Cr 和 Hg 暂定每周耐受摄入量(PTWI)分别为 7、25、15、15.2 和 5 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。参考 2002 年总膳食调查和文献资料(唐洪磊等, 2009; 孟祥周等, 2006), 将消费人群分为成年组和儿童组, 其体重取

值分别为 60 kg 和 30 kg, 每日贝类的消费量取 20 g, 计算贝类的膳食暴露量(表 6)。据表 6 数据, 无论是成人组还是儿童组, 山东省近岸养殖区贝类体中 5 种重金属的膳食暴露量较低, 仅四角蛤和海湾扇贝中 Cd 在儿童组的膳食暴露量超过 PTWI 的 50%, 其他重金属膳食暴露量占 JECFA 推荐值的比例很小, 处于安全范围内。同时研究表明, 大多数扇贝内脏团的重金属含量高于扇贝柱的重金属含量, 平均高约 2 倍(刘桂荣, 2005)¹⁾, 内脏是重金属元素富集的主要部位, 建议居民在食用贝类产品时, 尽量去除内脏后食用。

表 6 贝类重金属的膳食暴露量($\mu\text{g}/\text{kg}$)

Tab.6 The diet exposure of Hg, Cd, Pb, As and Cr in shellfish samples ($\mu\text{g}/\text{kg}$)

种类 Species	PTWI ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	Hg	Cd	Pb	As	Cr
		5	7	25	15	15.2
文蛤	成人 Adults	0.04	0.32	0.15	0.35	0.24
<i>Meretrix meretrix</i> L.	儿童 Children	0.07	0.63	0.31	0.70	0.49
四角蛤	成人 Adults	0.03	1.74	1.72	1.91	0.17
<i>Macrta veneriformis</i>	儿童 Children	0.06	3.49	3.45	3.83	0.35
菲律宾蛤仔	成人 Adults	0.02	0.50	0.23	0.82	0.44
<i>Ruditapes philippinarum</i>	儿童 Children	0.04	0.99	0.46	1.63	0.88
海湾扇贝	成人 Adults	0.10	2.04	0.18	1.49	0.46
<i>Argopecten irradians</i>	儿童 Children	0.20	4.08	0.36	2.98	0.91
栉孔扇贝	成人 Adults	0.05	0.26	0.14	0.37	1.03
<i>Chlamys farreri</i>	儿童 Children	0.11	0.51	0.28	0.75	2.05
牡蛎	成人 Adults	0.06	0.30	0.35	0.30	1.00
<i>Ostrea gigas</i>	儿童 Children	0.11	0.61	0.70	0.61	2.01
中国蛤蜊	成人 Adults	0.09	1.06	0.20	1.28	0.33
<i>Macrta chinensis</i>	儿童 Children	0.18	2.12	0.41	2.55	0.65
紫贻贝	成人 Adults	0.04	0.07	0.21	0.95	0.32
<i>Mytilus edulis</i>	儿童 Children	0.08	0.15	0.43	1.91	0.65

3 结论

山东省近岸贝类养殖区海水中 Hg、Cd、Pb、Cr、Cu 和 As 平均含量分别为 0.0512、0.359、0.678、2.28、2.73 和 3.23 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 海水中重金属含量均符合 II 类海

水水质标准, 重金属污染指数低, 超标风险较小, 水质状况良好; 沉积物中 Hg、Cd、Pb、Cu、As 和 Cr 平均含量分别为 0.0621、0.238、17.3、13.1、7.36 和 28.2 mg/kg , 沉积物中重金属均符合 I 类海洋沉积物质量标准。

贝类体内 Hg、Cd、Pb、Cu、As 和 Cr 平均含量分别为 0.0230、0.337、0.171、3.19、0.401 和 0.214 mg/kg , 贝类体 Hg、Cd、Pb 和 Cr 符合《食品安全国家标准食品中污染物限量》标准, Cu 符合 I 类海洋生物质量标准。

贝类对重金属的富集能力从大到小为 Cu、Cd、Hg、Pb、Cr、As, Cu、Cd 富集系数较高, 其他重金属富集系数相对较低, 重金属在研究海域贝类体内的蓄积情况并不严重。

重金属质量安全风险分析表明, 贝类体中 Cd、Pb、As、Cr 和 Hg 的膳食暴露量较低, 处于安全范围内, 建议去除内脏后食用。

致 谢: 感谢滨州市海洋环境监测站、东营市海洋与渔业环境监测中心、潍坊市海洋环境监测中心站、烟台市海洋环境监测预报中心、威海市海洋与渔业监测减灾中心、日照市海洋环境监测预报中心为本项研究进行的样品采集与分析工作!

参 考 文 献

- Adjei-Boateng D, Obirikorang KA, Amisah S. Relationship between gonad maturation and heavy metal accumulation in the clam, *Galatea paradoxa* (Born 1778) from the Volta Estuary, Ghana. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2011, 87(6): 626–632
- Cai QH, Du Q, Qian XM, *et al.* Quality assessment of marine ecological environment of cage culture area in the Looyuan Bay, Fujian Province. *Advances in Marine Science*, 2007, 25(1): 101–110 [蔡清海, 杜琦, 钱小明, 等. 福建罗源湾网箱养殖区海洋生态环境质量评价. *海洋科学进展*, 2007, 25(1): 101–110]
- Dai SG. *Environmental chemistry*. Beijing: Higher Education Press, 1997, 240–244 [戴树桂. *环境化学*. 北京: 高等教育出版社, 1997, 240–244]
- GB 2762-2012 National food safety standards in food contaminants. 2012 [GB 2762-2012 食品安全国家标准食品中污染物限量. 2012]
- Kenage EE. Predicted bioconcentration factors and soil sorption coefficient s of pesticides and other chemicals. *Ecotoxicology and Environment Safety*, 1980, 4: 26–38
- Guo L, Wu GH, Shang JM. State of toxic metals in the Bohai Sea, China: A review. *Marine Environmental Science*, 2014, 33(1): 169–176 [郭兰, 吴光红, 商靖敏. 渤海有毒金属污

1) Liu GR. The residue of heavy metal and safety assessment as food of scallop. Master's Thesis of Ocean University of China, 2005 [刘桂荣. 扇贝中重金属残留及食用风险分析. 中国海洋大学硕士研究生学位论文, 2005]

- 染状况和研究进展. 海洋环境科学, 2014, 33(1): 169–176]
- Lan XH, Mi BB, Li RH, *et al.* Distribution of heavy metals in surface in the eastern Bohai Sea and the northern Yellow Sea. *China Environmental Science*, 2014, 34(10): 2660–2668 [蓝先洪, 蜜蓓蓓, 李日辉, 等. 渤海东部和黄海北部沉积物中重金属分布特征. 中国环境科学, 2014, 34(10): 2660–2668]
- Li SY, Sun JP, Hong Z, *et al.* Acute toxic effects of zinc, cadmium, copper, chromium, selenium on *Crassostrea plicatula*. *Marine Environmental Science*, 2015, 34(6): 813–818 [李诗逸, 孙继鹏, 洪专, 等. Zn²⁺、Cd²⁺、Cu²⁺、Cr⁶⁺和 Se⁴⁺对褶牡蛎急性毒性效应研究. 海洋环境科学, 2015, 34(6): 813–818]
- Lin MM, Zhang Y, Xue CD, *et al.* Distribution pattern of heavy metals in the surface sediments of the area of circum-Bohai Bay and ecological environment assessment. *Marine Ecology and Quaternary Geology*, 2014, 34(10): 41–46 [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. 海洋地质与第四纪地质, 2014, 34(10): 41–46]
- Mao TY, Dai MX, Peng ST, *et al.* Temporal-spatial variation trend analysis of heavy metals (Cu, Zn, Pb, Cd, Hg) in Bohai Bay in 10 years. *Journal of Tianjin University*, 2009, 42(9): 817–825 [毛天宇, 戴明新, 彭士涛, 等. 近10年渤海湾重金属(Cu, Zn, Pb, Cd, Hg)污染时空变化趋势分析. 天津大学学报, 2009, 42(9): 817–825]
- Meng XZ, Yu LP, Guo Y, *et al.* DDT residues in typical fishes of Guangdong Province and human exposure via fish consumption. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2006, 1(2): 116–122 [孟祥周, 余莉萍, 郭英, 等. 滴滴涕类农药在广东省鱼类中的残留及人体暴露水平初步评价. 生态毒理学学报, 2006, 1(2): 116–122]
- Ministry of agriculture fishery and fishery administration. The bulletin of national fishery economic statistics. *China Fisheries*, 2015(6): 14–15 [农业部渔业渔政管理局. 2014年全国渔业经济统计公报. 中国水产, 2015(6): 14–15]
- National Marine & Environment Monitor Center. The specification for marine monitoring-Part 3: Sample collection, storage and transportation (GB 17378. 3-2007) [国家海洋监测中心. 海洋监测规范. 第3部分: 样品采集、贮存与运输 (GB 17378. 3-2007). 2007]
- Phillips DJH, Rainbow PS. *Biomonitoring of trace aquatic contaminants*. London: Elsevier Science, 1993, 371
- Qiu YW, Yan W, Wang ZD, *et al.* Distributions of heavy metals in seawater, sediments and organisms at Daya Bay and their ecological harm. *Journal of Tropical Oceanography*, 2005, 24(5): 69–76 [丘耀文, 颜文, 王肇鼎, 等. 大亚湾海水、沉积物和生物体中重金属分布及其生态危害. 热带海洋学报, 2005, 24(5): 69–76]
- Song YG, Wu JH, Shao ZW, *et al.* Evaluation of heavy metal pollution in the offshore surface seawater of the Liaodong Bay. 2016, 37(3): 14–19 [宋永刚, 吴金浩, 邵泽伟, 等. 辽东湾近岸表层海水重金属污染分析与评价. 渔业科学进展, 2016, 37(3): 14–19]
- Sun WP, Pan JM, Liu XY, *et al.* Study of the content of heavy metals in the mollusks from the near-shore of Zhejiang Province. *Journal of Marine Sciences*, 2010, 28(4): 43–49 [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. 海洋学研究, 2010, 28(4): 43–49]
- Sun PY, Wang B. Accumulation and distribution of Zn, Cu and Pb in Sesarmdehaani. *Marine Environmental Science*, 2004, 22(2): 19–24
- Tang HL, Guo Y, Meng XZ, *et al.* A preliminary survey on the nutritional structures for coastal residents of Guangdong Province, China and food pollution—Assessment of human exposure to persistent halogenated hydrocarbons and heavy metals. *Journal of Agro-Environment Science*, 2009, 28(2): 329–336 [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. 农业环境科学学报, 2009, 28(2): 329–336]
- Third Institute of Oceanography, State Oceanic Administration. *Marine Biological Quality Standard (GB18412-2001)*. 2001 [国家海洋局第三海洋研究所. 海洋生物质量标准 (GB18412-2001). 2001]
- Wang CX, Li SZ, Xu RY. Study on arsenic speciation in the environment. *Chines Journal of Environmental Science*, 1983, 14(4): 53–57 [王春旭, 李生志, 徐荣玉. 环境中砷的存在形态研究. 环境科学, 1983, 14(4): 53–57]
- Wang WL, Geng AC, Liu HT, *et al.* Distribution and potential ecological risk evaluation of heavy metals in the surface sediments from the Jiulongjiang River estuary. *Advances in Marine Science*, 2009, 27(4):503–508 [王伟力, 耿安朝, 刘花台, 等. 九龙江口表层沉积物重金属分布及潜在生态风险评价. 海洋科学进展, 2009, 27(4): 503–508]
- Wang WX, Pan JF. The transfer of metals in marine food chains: A review. *Acta Ecologica Sinica*, 2004, 24(3): 599–604 [王文雄, 潘进芬. 重金属在海洋食物链中的传递. 生态学报, 2004, 24(3): 599–604]
- Wang ZH, Lin Q, Wang XN. Analysis of lead content in marine organisms and risk assessment in Daya Bay. *South China Fisheries Science*, 2010, 6(1): 54–58 [王增焕, 林钦, 王许诺. 大亚湾海洋生物体内铅的含量与风险评估. 南方水产, 2010, 6(1): 54–58]
- Wang ZZ, Wang WD, Yang Y, *et al.* Acute toxic effects of four heavy metals on *Moerella iridescens*. *Oceanologia et Limnologia Sinica*, 2007, 38(4): 373–378 [王志铮, 王伟定, 杨阳, 等. 4种重金属离子对彩虹明樱蛤(*Moerella iridescens*)的急性致毒效应. 海洋与湖沼, 2007, 38(4): 373–378]
- Weng HX, Presley BJ. Bioaccumulation of heavy metals in oyster (*Crassostrea virginica*). *Acta Scientiae Circumstantiae*, 1996, 16(1): 51–58 [翁焕新, Presley BJ. 重金属在牡蛎(*Crassostrea virginica*)中的生物积累及其影响因素的研究. 环境科学学报, 1996, 16(1): 51–58]
- Xu Y, Wang Y, Zhou B, *et al.* Study on single and joint toxic effects of cadmium and lead on *Ruditapes philippinarum*. *Marine Environmental Science*, 2013, 32(1): 6–10 [徐彦, 王悠, 周斌, 等. Cd²⁺和 Pb²⁺的单一和复合作用对菲律宾蛤仔的急性毒性效应研究. 海洋环境科学, 2013, 32(1): 6–10]
- Xu YD, Wei X, Xia B, *et al.* Potential ecological risk assessment of heavy metals in surface sediments of the eastern Laizhou Bay. *Advances in Marine Science*, 2015a, 33(4): 520–528

- [徐艳东, 魏潇, 夏斌, 等. 莱州湾东部海域表层沉积物重金属潜在生态风险评价. 海洋科学进展, 2015a, 33(4): 520-528]
- Xu YD, Wei X, Yang JM, *et al.* Contaminant characteristics and ecological risk assessment on pollution by seven heavy metals in surface sediments in Shandong coastal areas. *Oceanologia et Limnologia Sinica*, 2015b, 46(3): 651-658 [徐艳东, 魏潇, 杨建敏, 等. 山东近岸海域表层沉积物 7 种重金属污染特征和生态风险评估研究. 海洋与湖沼, 2015b, 46(3): 651-658]
- Yan JX, Li MY, Li YN, *et al.* Acute toxic effect of Hg^{2+} and Cd^{2+} on *Gafrarium tumidum*. *Journal of Guangdong Ocean University*, 2014, 34(1): 66-70 [严俊贤, 李铭垚, 李有宁, 等. 重金属 Hg^{2+} 、 Cd^{2+} 对凸加夫蛤的急性毒性效应. 广东海洋大学学报, 2014, 34(1): 66-70]
- Yu QY, Wang Y, Xu Y, *et al.* Effects of cadmium and lead on the lipid peroxidation and levels of antioxidant enzymes in *Ruditapes philippinarum*. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2013, 8(4): 504-512 [于庆云, 王悠, 徐彦, 等. 镉和铅对菲律宾蛤仔脂质过氧化及抗氧化酶活性的影响. 生态毒理学学报, 2013, 8(4): 504-512]
- Zhang YK, Song XK, Liu AY, *et al.* Acute toxicity effects of Cd^{2+} and Cu^{2+} on *Meretrix linnaeus*. *Transactions of Oceanology and Limnology*, 2011, 3(5): 51-56 [张宜奎, 宋秀凯, 刘爱英, 等. 重金属 Cd^{2+} 、 Cu^{2+} 对文蛤的急性毒性. 海洋湖沼通报 2011, 3(5): 51-56]
- Zheng YM, Gao MS, Liu S, *et al.* Distribution patterns and ecological assessment on heavy metals in the surface sediments of Laizhou Bay. *Marine Environmental Science*, 2015, 34(3): 354-360 [郑懿珉, 高茂生, 刘森, 等. 莱州湾表层沉积物重金属分布特征及生态环境评价. 海洋环境科学, 2015, 34(3): 354-360]
- Zhou B, Liu W, Liu YG, *et al.* Potential ecological risk analysis of heavy metals in surface sediments from typical ecologically regions of south Bohai Bay. *Marine Environmental Science*, 2013, 32(4): 535-537 [周斌, 刘伟, 刘有刚, 等. 渤海湾南部典型生态区表层沉积物重金属潜在生态风险分析. 海洋环境科学, 2013, 32(4): 533-537]
- Zhuang SH, Liu XM, Li H. Study on the accumulation of heavy metals (Pb, Cd, Cu, Zn) in the bodies of invertebrates sampled from intertidal zones of Yantai sea area. *Marine Science Bulletin*, 1998, 17(2): 42-50 [庄树宏, 刘雪梅, 李晖. 烟台海域潮间带无脊椎动物对 Pb、Cd、Cu、Zn 的富集作用. 海洋通报, 1998, 17(2): 42-50]

(编辑 冯小花)

Status of Heavy Metal Pollution in the Shellfish Culture Area of Shangdong Province and the Risk Analysis of Heavy Metal Elements in the Shellfish

SUN Shan, ZHAO Yuting, WANG Liming, YOU Liping, TAO Huimin, GU Weili, ZHANG Xiuzhen^①

(Shandong Marine Resource and Environment Research Institute, Shandong Key Laboratory of Marine Ecological Restoration, Yantai 264006)

Abstract In this study, we evaluated the accumulation of heavy metals in organisms, and discussed its effect on the quality and food safety of the shellfish. The status of heavy metal pollution was analyzed in the seawater, sediments and organisms in the major shellfish culture area of Shangdong Province in August 2014. The contents of heavy metals in the water followed the order $As > Cu > Cr > Pb > Cd > Hg$; the order in sediments was $Cr > Pb > Cu > As > Cd > Hg$; in organisms, it was $Cu > As > Cd > Cr > Pb > Hg$. It was found that the contents of heavy metals in the seawater met the second seawater quality standard, and those in sediments complied with the first marine sediment quality standard. We also found that the contents of Hg, Cd, Pb and Cr in seashells were below the limit according to the standard for the toxic substance in the non-environmental pollution aquatic products. The level of Cu was lower than the limit according to the first marine biological quality standard. The enrichment coefficients of heavy metals in the shellfish followed the order $Cu > Cd > Hg > Pb > Cr > As$. There accumulation of heavy metals in the shellfish was moderate. Based on the evaluation of the heavy metal pollution in the shellfish, we concluded that the food safety risk of the shellfish in the major culture area of Shangdong Province was relatively low. However, we highly recommend the removal of internal organs of the shellfish before consumption.

Key words Shellfish culture area; Heavy metal; Pollution evaluation; Accumulation; Shellfish quality safety

① Corresponding author: ZHANG Xiuzhen, E-mail: zxz0535501@126.com