

DOI:10.7524/AJE.1673-5897.20180616001

张敏, 张涛, 郜志云, 等. 保安湖鱼体重金属和有机氯农药污染特征及健康风险评估[J]. 生态毒理学报, 2018, 13(6): 288-297

Zhang M, Zhang T, Gao Z Y, et al. Pollution characteristics and risk assessment of heavy metals and organochlorine pesticides in fish of Baoan Lake [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2018, 13(6): 288-297 (in Chinese)

保安湖鱼体重金属和有机氯农药污染特征及健康风险评估

张敏¹, 张涛², 郜志云^{2,*}, 孙宏亮², 刘伟江²

1. 首都师范大学资源环境与旅游学院, 北京 100048

2. 环境保护部环境规划院, 北京 100012

收稿日期: 2018-06-16 录用日期: 2018-09-06

摘要: 在湖北保安湖采集主要食用鱼类(团头鲂、鲫鱼、草鱼)样品, 通过测定鱼体中的重金属(Cr、Cd、As、Pb、Hg、Cu、Zn)和有机氯农药(六六六(HCHs)、滴滴涕(DDTs))含量, 基于不同评估模型分析了这3种鱼的污染特征和健康风险。结果显示, 鱼样中Cr、Cu、Zn、As、Cd、Pb和Hg的含量分别为1.03~1.13、0.93~1.66、22.80~31.54、0.08~0.49、0.004~0.007、0.040~0.050和0.03~0.06 mg·kg⁻¹; 鱼样中HCHs、DDTs的含量为5.94~38.04和5.99~38.38 ng·g⁻¹ ww。根据国家规定的有毒有害物质限量标准, 团头鲂和鲫鱼中As分别超标0.2和3.9倍; 鲫鱼体内HCHs和草鱼体内DDTs含量分别超标0.9和2.8倍; 其他鱼样重金属和有机氯农药含量均未超过标准限值。总体来看, 鲫鱼重金属严重污染, 重金属综合污染程度的顺序是鲫鱼>团头鲂>草鱼; 鲫鱼和草鱼体内有机氯农药(OCPs)达到重度污染, OCPs综合污染程度为草鱼>鲫鱼>团头鲂; 3种鱼样重金属和OCPs复合暴露条件下健康风险评估结果表明, 食用3种鱼肉的致癌风险都大于10⁻⁶, 即均存在一定的潜在致癌风险, 致癌风险概率为鲫鱼>草鱼>团头鲂, 同时, 食用鲫鱼还存在非致癌健康风险, 其污染来源及有效防治值得进一步研究。

关键词: 重金属; 有机氯农药; 鱼体; 健康风险

文章编号: 1673-5897(2018)6-288-10 中图分类号: X171.5 文献标识码: A

Pollution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals and Organochlorine Pesticides in Fish of Baoan Lake

Zhang Min¹, Zhang Tao², Gao Zhiyun^{2,*}, Sun Hongliang², Liu Weijiang²

1. College of Resource Environment and Tourism, Capital Normal University, Beijing 100048, China

2. Environmental Planning Department of the Ministry of Environmental Protection, Beijing 100012, China

Received 16 June 2018 accepted 6 September 2018

Abstract: The concentration of heavy metals and organochlorine pesticides (OCPs) was investigated in main edible fish (*Megalobrama amblycephala*, *Carassius auratus*, *Ctenopharyngodon idellus*) collected from Baoan Lake in Hubei Province. Pollution characteristics and potential health risk to local consumers were conducted based on different assessment models. The results display that the concentration ranges of Cr, Cu, Zn, As, Cd, Pb and Hg in fish samples are 1.03 to 1.13, 0.93 to 1.66, 22.80 to 31.54, 0.08 to 0.49, 0.004 to 0.007, 0.040 to 0.050, and 0.03 to

基金项目: 核壳结构铁铝双金属材料制备及其对土壤氯代烃类污染物的还原机制研究(41701367)

作者简介: 张敏(1993-), 女, 硕士, 研究方向为流域水环境管理、环境毒理、水文模型等, E-mail: zhangminbl@126.com;

* 通讯作者(Corresponding author), E-mail: gaozy@caep.org.cn

0.06 mg·kg⁻¹, and the concentration of hexachlorocyclohexane (HCHs) and dichlorodiphenyltrichloroethane (DDTs) in the fish species ranged from 5.94 to 38.04 and from 5.99 to 38.38 ng·g⁻¹ ww. According to the limit standards of toxic and hazardous substances in aquatic products, the concentration of As in *Megalobrama amblycephala* and *Carassius auratus* exceeded the standard limit respectively by 0.2 and 3.9 times; the concentration of HCHs in *Carassius auratus* and DDTs in *Ctenopharyngodon idellus* exceeded the standard by 0.9 and 2.8 times respectively; the levels of other heavy metals and organochlorine pesticides met domestic standards. As a whole, the pollution of heavy metals in *Carassius auratus* was at the level of high pollution, and the order from large to small of the heavy metals comprehensive pollution degree was *Carassius auratus*, *Megalobrama amblycephala* and *Ctenopharyngodon idellus*. The pollution of OCPs in *Carassius auratus* and *Ctenopharyngodon idellus* also exceeded the level of high pollution, and the order from large to small of OCPs comprehensive pollution degree was *Ctenopharyngodon idellus*, *Carassius auratus* and *Megalobrama amblycephala*. On the condition of combined exposure of heavy metals and OCPs, the risk assessment manifested that there was a certain potential carcinogenic risk to the human body in the daily consumption of fishes from Baoan Lake, and the order of carcinogenic risk from large to small was *Carassius auratus*, *Ctenopharyngodon idellus* and *Megalobrama amblycephala*. Besides, there was non-carcinogenic risk for daily consumption of *Carassius auratus*. So, the pollution sources and effective controls of heavy metals and OCPs will be worth the further studies.

Keywords: heavy metal; organochlorine pesticide; fish body; health risk

重金属及有机氯农药是一类具有持久性、生物蓄积性和毒性的环境污染物,可以通过食物链在生态系统中富集传播^[1-2]。鱼类在水生态系统中处于食物链的较高级别,可较好地作为表征水环境污染程度的生物指示体。人类食用含有重金属的鱼会对肾脏、肝脏等主要器官造成损伤,严重危害健康^[3],OCPs对人体更具有“三致”(致癌、致畸和致突变)作用^[4]。

保安湖是长江中下游南岸一个典型的浅水草型湖泊,位于湖北省大冶市西北部,属梁子湖水系,以生活用水和渔业养殖为主。大冶市属于《重金属污染防治“十三五”规划》重点防控区,保安湖主要入汇支流上游分布有相当数量的涉重企业;保安湖周边农业种植广泛分布,历史上HCHs和DDTs等有机氯农药被大量用于防治农业病虫害。重金属和有机氯农药通过各种途径进入保安湖湖体,对水生态系统造成一定的生态风险。保安湖作为水产养殖发达的湖泊,研究其盛产的鱼类可食用部分重金属和有机氯农药污染状况和健康风险十分必要。

本文以保安湖中主要食用鱼为重点研究对象,对其可食用部分中的重金属(Cr、Cd、As、Pb、Hg、Cu、Zn)和有机氯农药(HCHs、DDTs)富集情况展开调查,分析鱼体组织内重金属和HCHs、DDTs污染状况,进而对保安湖的主要水产品进行健康风险评估,以期对保安湖的污染防治和居民膳食指导提

供参考。

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 样品采集

采用传统捕捞形式的鱼类资源调查方法,于2015年3月在保安湖捕获三类不同品种的鱼(团头鲂、鲫鱼、草鱼)共20尾,体长15~35 cm,采集地点包括保安镇、还地桥镇和东风农场等,尽可能地涵盖整个湖区。样品现场用水洗净,冷冻保存运输回实验室。

1.2 样品处理与分析

将鱼样在室温下解冻剥离鱼刺后,用去离子水冲洗、晾干,将鱼体肌肉用不锈钢剪刀剪碎,匀浆器匀浆后冷冻干燥,研磨成粉待测。研磨时每种鱼3~4条汇集成一个样品用于测定重金属和有机氯农药含量。鱼样中重金属的测定采用湿法消解进行前处理,Cr、Cd、As、Pb、Cu和Zn采用电感耦合等离子体质谱仪(Perkin Elmer, Elan DRC-e)测定,Hg采用原子荧光分光光度计(北京普析,PF6-2型)进行分析。鱼样中HCHs、DDTs采用加速溶剂萃取净化、凝胶渗透色谱法在线净化,后继续用多层硅胶柱纯化的前处理方法,用气相色谱-质谱法(Agilent GC/MS-6890/5975)分析,外标法定量检测。

1.3 质量控制

重金属测定时所有样品进行平行样测定,各种目标重金属的相对标准偏差均小于5%,同时采用

标准物质进行质量控制。HCHs、DDTs 利用混合标样对样品各峰进行外标定性、定量,每 10 个样品添加一个溶剂空白和程序空白,回收指示物回收率为 70.4% ~ 92.5%。

2 评价标准与方法(Evaluation criteria and methods)

2.1 鱼体中污染物含量及污染状况评价

不同水产品及不同的产业对鱼体中重金属和 OCPs 含量要求不同。本研究鱼体中污染物含量的污染程度评价标准分别按照《食品中污染物限量》(GB2762—2017)^[5]、《无公害食品水产品中有毒有害物质限量》(NY5073—2006)^[6]和《食品中锌限量卫生标准》(GB13106—1991)^[7]执行,污染物具体限量值详见表 1。

对于生物体污染状况评价,目前国内外尚没有权威的评价标准。本研究选择单因子污染指数法和综合污染指数法^[8]对鱼体内重金属和 OCPs 污染程度进行评价,其计算公式为:

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

式(1)中, P_i 为污染物 i 的单项污染指数; C_i 为污染物 i 的含量实测值, $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; S_i 为污染物 i 的含量标准值(见表 1), $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。

重金属评价标准: $P_i \leq 0.2$ 时,表示无污染; $0.2 < P_i \leq 0.6$ 时,表示轻度污染; $0.6 < P_i \leq 1.0$ 时,表示中度污染; $P_i > 1.0$ 时,表示重度污染^[9]。

OCPs 评价标准: $P_i \leq 0.5$ 时,表示无污染; $0.5 < P_i \leq 1.0$ 时,表示轻度污染; $P_i > 1.0$ 时,表示重度污染^[10]。

对于生物样品中多种重金属和多种 OCPs 的污染影响,本文采用均方根综合指数进行分析,计算公

式如下:

$$PI = [(\sum P_i^2)/n]^{1/2} \quad (2)$$

式(2)中,PI 为综合污染指数; P_i 为该样品污染物 i 的单因子污染指数; n 为污染物的种类数。

根据综合污染指数的计算结果将污染物的污染水平划分为 4 个等级:PI ≤ 1.0 为无污染;PI ≤ 2.0 为轻度污染;PI ≤ 3.0 为中度污染;PI > 3.0 为重度污染。

2.2 鱼体中污染物健康风险评估

污染物经不同途径对人体健康的危害需重点关注污染物的致癌效应和非致癌危害效应。保安湖湖区居民的鱼类消费以本地鱼为主,周边乡镇居民食用鱼肉的过程中会同时摄入残留在鱼体中的重金属和有机氯农药等污染物,存在潜在健康风险。本研究通过计算经口摄入污染物的致癌和非致癌风险评估保安湖湖区及周边乡镇居民食用鱼肉产生的健康风险。

2.2.1 污染物致癌健康风险

参照 US EPA 评价标准^[11],针对 Cr、Cd 和 As 等重金属以及有机氯农药等具有致癌效应的污染物,对食用鱼肉摄入这些污染物产生的致癌效应进行致癌风险指数(carcinogenic risk indices, CRI)分析,即人体暴露于该致癌物质而引起的超过正常水平的癌症发病率,采用公式(3)计算如下:

$$CRI_i = \frac{F_{IR} \times E_F \times E_D}{W_{AB} \times T_A} \times SF_i \times C_i \quad (3)$$

式(3)中, CRI_i 为食用该地区鱼肉产生的单一污染物 i 的致癌效应, F_{IR} 为鱼肉摄入量($\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,保安湖周边居民的水产品摄入量为 $44.5 \text{ g}\cdot\text{d}^{-1}$ ^[12]), E_F 为人群暴露频率($365 \text{ d}\cdot\text{y}^{-1}$), E_D 为暴露时间(通常取平均寿命 70 y ^[13]), SF_i 为污染物 i 的经口摄入致癌斜率因

表 1 鱼体中污染物限量值

Table 1 Contaminant limits in fish

污染物 Pollutants	Pb	Cr	Cu	Zn	As	Cd	Hg	HCHs	DDTs
限量值/($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	0.5	2.0	50	50	0.1	0.1	0.5	0.02	0.01
Limited value/($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	0.5	2.0	50	50	0.1	0.1	0.5	0.02	0.01

注:HCHs、DDTs 表示六六六和滴滴涕。

Note: HCHs, DDTs stand for hexachlorocyclohexane and dichlorodiphenyltrichloroethane.

表 2 重金属和有机氯农药(OCPs)经口摄入致癌斜率因子(SF_i)^[11]

Table 2 Oral intake of carcinogenic slope factor (SF_i) by heavy metals and organochlorine pesticides (OCPs) ^[11]

	Cr	Cd	As	α -HCH	β -HCH	γ -HCH	DDE	DDD	DDT
$SF_i/(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1})^{-1}$	0.5	0.38	1.5	6.3	1.8	1.3	0.34	0.24	0.34

注:DDE、DDD 表示滴滴伊、滴滴涕。

Note: DDE and DDD stand for chlorodiphenyldichloroethylene and dichlorodiphenyldichloroethane.

子(($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$)), 见表 2, C_i 为食物中污染物 i 的含量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), W_{AB} 为人体平均体重(kg), 人均体重取 $60 \text{ kg}^{[13]}$, T_A 为致癌性暴露平均时间(d), 取值为 $365 \cdot E_D$ 。

一般认为, CRI 是一个阈值范围, 通常设定 1×10^{-6} 为可接受致癌风险水平下限, 1×10^{-4} 为可接受致癌风险水平上限, 即当 $\text{CRI} < 1 \times 10^{-6}$ 时, 认为该物质是安全的; 当 CRI 取值介于 1×10^{-6} 和 1×10^{-4} 之间时, 该化学物对人体具有潜在致癌风险, 但人体可接受该化学物的致癌风险; 当 $\text{CRI} > 1 \times 10^{-4}$ 时, 该物质具有较大致癌风险, 对人体是不安全的。

2.2.2 污染物非致癌健康风险

人体摄入食用鱼肉中污染物的非致癌健康风险可以采用美国环保署(US EPA)于 2000 年发布的目标危害系数法(target hazard quotient, THQ)^[14]评价。该方法是基于污染物吸收剂量等于摄入量, 以人体摄入污染物剂量与其参考剂量的比值作为评价标准。US EPA 将非致癌目标风险商的控制标准定为 1, 若污染物 i 的非致癌目标风险商 $Q_i \leq 1$, 说明污染物对暴露人群没有明显的健康风险; 若 $Q_i > 1$, 则存在健康风险。 Q_i 值越大, 表明该污染物对人体健康风险越大。 Q_i 计算公式为:

$$Q_i = \frac{F_{\text{IR}} \times E_{\text{F}} \times E_{\text{D}} \times C_i}{R_{\text{FD},i} \times W_{\text{AB}} \times T_A} \times 10^{-3} \quad (4)$$

式(4)中, F_{IR} 为鱼肉摄入量($\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$), 保安湖周边居民的水产品摄入量为 $44.5 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ ^[12], E_{F} 为人群暴露频率($365 \text{ d} \cdot \text{y}^{-1}$), E_{D} 为暴露时间(通常取平均寿命 $70 \text{ y}^{[13]}$), C_i 为食物中污染物 i 的含量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), $R_{\text{FD},i}$ 为口服参考剂量($\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$), 见表 3, W_{AB} 为人体平均体重(kg), 人均体重取 $60 \text{ kg}^{[13]}$, T_A 为非致癌性暴露平均时间(d), 取值为 $365 \cdot E_D$ 。

2.2.3 多种污染物复合暴露健康风险

多种化合物复合暴露致癌风险 CRI 计算公式为:

$$\text{CRI} = \sum \text{CRI}_i \quad (5)$$

多种化合物复合暴露非致癌健康风险 Q 计算公式为:

$$Q = \sum Q_i \quad (6)$$

3 结果与分析 (Results and analysis)

3.1 鱼体重金属含量分析

本次调查, 团头鲂和鲫鱼体中均可检测出 7 种重金属, 草鱼体中可检测出 6 种重金属, Pb 未检出。所检测的 3 种鱼样中, Cr、Cu、Zn、As、Cd、Pb 和 Hg

的含量分别为: $1.03 \sim 1.13$ 、 $0.93 \sim 1.66$ 、 $22.80 \sim 31.54$ 、 $0.08 \sim 0.49$ 、 $0.004 \sim 0.007$ 、 $0.040 \sim 0.050$ 和 $0.03 \sim 0.06 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。3 种鱼样中, Cu、Zn、As、Cd、Hg 5 种重金属的最高值均出现在鲫鱼样品中, 重金属 Cr 的含量最高值出现在草鱼样品中, Pb 的最高值出现在团头鲂样品中。

根据 GB2762—2017 和 NY5073—2006 中水产品重金属的限量(表 1)评价, 鱼样 Cr、Cu、Zn、Cd、Pb、Hg 均未出现重金属超标, 但团头鲂和鲫鱼中 As 超过标准限值($0.1 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), 分别超标 0.2 和 3.9 倍, 草鱼中 As 含量未超过限值。将保安湖鱼体内重金属含量与其他区域相同品种鱼体重金属含量进行对比(表 4), Cd 和 Pb 含量整体处于较低水平; As 含量在保安湖鲫鱼体内较其他区域高, 但在团头鲂和草鱼体内比别的区域低; Cr 含量较珠江三角洲河网区低, 比别的区域高; Cu 含量较淮河蚌埠段和珠江三角洲河网区低, 比别的区域高; Zn 含量较太湖低, 比别的区域高; Hg 含量在鲫鱼和草鱼中较太湖低, 其他比别的区域高; 与其他研究区域相比保安湖鱼体内 Cr、Cu、Zn、Hg 含量整体相对偏高。

根据污染指数公式计算出保安湖鱼类重金属单项污染指数和综合污染指数(见表 5)。从单项污染指数评价来看, 3 种鱼体肌肉中 Cu、Cd、Pb 和 Hg 污染等级均为无污染, Cr 污染等级为轻度污染, Zn 污染等级为轻度到中度污染, As 污染等级为中度到重度污染; 从综合污染指数来看, 团头鲂和草鱼为中度污染, 鲫鱼为严重污染, 综合污染程度为鲫鱼 > 团头鲂 > 草鱼。

表 3 重金属和 OCPs 口服剂量参考值 ($R_{\text{FD},i}$)^[11]
Table 3 Reference harm dosage ($R_{\text{FD},i}$) for heavy metals and organochlorine pesticides^[11]

参数 Parameters	单位 Units	$R_{\text{FD},i}$
Cr		1.5
Cu		0.04
Zn		0.3
Pb	$\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$	0.0004
Cd		0.001
Hg		0.0005
As		0.0003
alpha-HCH		8
beta-HCH		0.2
gamma-HCH		0.3
4,4'-DDE	$\mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$	0.5
4,4'-DDD		-
4,4'-DDT		-

表4 保安湖鱼类肌肉中重金属含量与其他区域比较
Table 4 Comparison of heavy metal concentration in muscles of fish in Baoan Lake with those of other areas

鱼类 Fish species	评价区域 Evaluation area	均值/(mg·kg ⁻¹) Mean value/(mg·kg ⁻¹)							来源 Source
		Cr	Cu	Zn	As	Cd	Pb	Hg	
<i>Megalobrama amblycephala</i>	保安湖 Baoan Lake	1.03	0.93	22.80	0.12	0.004	0.050	0.05	本文 This study
	淮河蚌埠段 Huaihe River in Bengbu Section	-	2.236	6.714	-	0.608	-	-	[15]
	太湖 Taihu Lake	0.308	-	25.2	0.259	0.018	0.175	0.040	[16]
<i>Carassius auratus</i>	保安湖 Baoan Lake	1.09	1.66	31.54	0.49	0.007	0.040	0.06	本文 This study
	珠江三角洲河网区 River network area in Pearl River Delta	2.55	3.26	6.83	0.24	0.006	0.59	0.003	[17]
	太湖 Taihu lake	0.286	-	128.5	0.102	0.017	0.036	0.102	[16]
	东江惠州段 Dongjiang River in Huizhou Section	0.050	0.140	6.70	-	-	0.063	0.039	[18]
	东北地区 Northeast China	0.115	0.342	9.74	0.126	0.013	0.210	0.023	[19]
<i>Ctenopharyngodon idellus</i>	保安湖 Baoan Lake	1.13	1.29	26.48	0.08	0.004	nd	0.03	本文 This study
	珠江三角洲河网区 River network area in Pearl River Delta	1.45	3.83	7.42	0.19	nd	0.17	0.003	[17]
	太湖 Taihu Lake	0.459	-	30.5	0.141	0.005	0.036	0.075	[16]
	东江惠州段 Dongjiang River in Huizhou Section	0.027	0.164	3.58	-	-	0.058	0.017	[18]
	东北地区 Northeast China	0.134	0.267	6.03	0.087	0.009	0.155	0.009	[19]

注:鱼类肌肉以湿重计;“-”未进行相关值的测定研究;“nd”未检出。

Note: calculated based on the wet weight of fish muscles; "-" no correlation study; "nd" not detected.

表5 保安湖鱼类肌肉中重金属污染指数
Table 5 Index of heavy metals pollution in fish muscle of Baoan Lake

鱼类 Fish species	污染指数(P _i) Pollution index (P _i)							综合污染指数(PI) Comprehensive pollution index (PI)
	Cr	Cu	Zn	As	Cd	Pb	Hg	
<i>Megalobrama amblycephala</i>	0.52	0.02	0.46	1.20	0.04	0.10	0.1	0.53
<i>Carassius auratus</i>	0.55	0.03	0.63	4.90	0.07	0.08	0.12	1.88
<i>Ctenopharyngodon idellus</i>	0.57	0.03	0.53	0.80	0.04	nd	0.06	0.42

3.2 鱼体 OCPs 含量分析

本研究测定了3个鱼样中HCHs和DDTs的含量(见表6)。结果表明,鱼样中团头鲂、鲫鱼和草鱼肌肉中HCHs的含量依次为14.85、38.04和5.94 ng·g⁻¹湿重(ww),均值19.61 ng·g⁻¹ ww;DDTs的含量依次为6.63、5.99和38.38 ng·g⁻¹ ww,均值17.00 ng·g⁻¹ ww。我国农业部颁布的标准NY5073—2006《无公害食品水产品中有毒有害物质限量》规定(表1),DDTs浓度不得大于0.01 mg·kg⁻¹,HCHs浓度不得大于0.02 mg·kg⁻¹,本项目检测的鱼样中,鲫鱼中HCHs含量和草鱼中DDTs含量出现超标,分别超标0.9和2.8倍。从农药残留的整体水平来看,3种鱼样中鲫鱼、草鱼农药总的残留量相当,分别为44.03 ng·g⁻¹ ww和44.32 ng·g⁻¹ ww,团头鲂农药残留量较少为21.48 ng·g⁻¹ ww。将保安湖鱼体内HCHs和DDTs含量与国内外其他水域鱼体内OCPs含量进行对比可知(表7),保安湖鱼体OCPs含量高于长江江段、杭州湾、瑞典和柬埔寨,明显低于白洋淀、辽东半岛海域和多瑙河,总体处于中低水平。

根据污染指数公式计算出保安湖鱼类OCPs单项污染指数和综合污染指数(见表8)。从单项污染指数评价来看,草鱼未受到HCHs污染,团头鲂为HCHs轻度污染,鲫鱼为HCHs重度污染;团头鲂、鲫鱼为DDTs轻度污染,草鱼为DDTs重度污染($P_i > 1$)。从综合污染评价来看,团头鲂为中度污染,鲫鱼和草鱼达到重度污染,OCPs综合污染程度为草鱼>鲫鱼>团头鲂。

3.3 鱼体重金属健康风险评估

对湖区居民食用这3种鱼摄入的重金属进行健康风险评估。根据表3数据利用公式(3)和公式(4)

计算该地区人群食用鱼肉摄入的重金属致癌风险指数CRI_i和非致癌目标风险商Q_i(见表9)。结果显示,这3种鱼体内重金属致癌风险指数CRI_i均小于10⁻⁴,表明所调查的样品重金属残留是人体可接受的致癌风险,每种鱼体内重金属致癌风险指数之和都大于10⁻⁶,存在一定的潜在致癌风险,应持续关注鱼体内致癌重金属的含量变化。这7种重金属非致癌目标风险商Q_i除鲫鱼体内的As为1.251,其余均小于1,食用鲫鱼时As的Q_i总计为1.538,存在一定非致癌健康风险。US EPA将非致癌目标风险商的控制标准定为1,由表9可以看出食用鲫鱼存在一定的非致癌健康风险,而食用团头鲂和草鱼时重金属对暴露人群没有明显的非致癌健康风险。

3.4 鱼体 OCPs 残留风险评估

根据公式(3)和(4)计算鱼肉样品中有机氯农药致癌风险指数(CRI_i)和非致癌目标风险商(Q_i),见表10。alpha-HCH、beta-HCH、gamma-HCH、4,4'-DDE、4,4'-DDD和4,4'-DDT的致癌风险指数(CRI_i)范围为2.55×10⁻⁶~33.35×10⁻⁶,3种鱼CRI_i总值为28.67×10⁻⁶~59.17×10⁻⁶,CRI值均低于10⁻⁴,为可接受的致癌风险。alpha-HCH、beta-HCH、gamma-HCH、4,4'-DDE、4,4'-DDD和4,4'-DDT的非致癌风险商Q_i范围为0.005~0.088,Q_i总值为0.062~0.132,均小于1,即人体食用调查鱼样对农药的接触量低于危害剂量参考值,是可接受的非致癌危害效应风险。研究表明所调查的样品农药残留量对人体不构成致癌风险。但CRI_i值均大于10⁻⁶,存在一定的潜在致癌风险,鲫鱼、草鱼CRI_i、Q_i总值相当且都比较大,应持续关注这2种鱼的风险变化。

表6 鱼样中有机氯分析结果 (ng·g⁻¹ ww)

Table 6 Analysis of organochlorine in fish samples (ng·g⁻¹ ww)

农药名称 Name of pesticide	团头鲂 <i>Megalobrama amblycephala</i>	鲫鱼 <i>Carassius auratus</i>	草鱼 <i>Ctenopharyngodon idellus</i>
alpha-HCH	<0.10	<0.10	<0.10
beta-HCH	14.85	23.72	4.03
gamma-HCH	<0.10	14.32	1.91
4,4'-DDE	6.63	5.99	24.98
4,4'-DDD	<0.10	<0.10	<0.10
4,4'-DDT	<0.10	<0.10	13.40

3.5 鱼体重金属和 OCPs 复合暴露风险评估

对于鱼体重金属和有机氯农药的复合暴露风险根据公式(5)和公式(6)进行计算。结合表(9)和表(10),3种鱼体内重金属和 OCPs 复合暴露评估结果如下(见表 11)。团头鲂、鲫鱼、草鱼这 3 种鱼复合暴露致癌风险指数 CRI 分别为 33.836×10^{-6} 、 $68.103 \times$

10^{-6} 和 64.261×10^{-6} , CRI 都大于 10^{-6} 并小于 10^{-4} , 即复合暴露条件下食用保安湖内的这 3 种鱼摄入的化学物质存在一定的潜在致癌风险,应持续关注,但是人体可接受的致癌风险。团头鲂、鲫鱼、草鱼复合暴露非致癌风险 Q 分别为 0.62、1.67 和 0.423,根据 US EPA 非致癌风险的控制标准规定,鲫鱼的复合暴露

表 7 国内外不同区域鱼体中 OCPs 含量水平比较

Table 7 Comparison of OCPs levels in fish bodies from different regions at home and abroad

评价区域 Evaluation area	研究鱼类 Studied fish	均值/(ng·g ⁻¹ ww) Mean value/(ng·g ⁻¹ ww)		来源 Source
		HCHs	DDTs	
保安湖 Baoan Lake	团头鲂、鲫鱼、草鱼 <i>Megalobrama amblycephala</i> , <i>Carassius auratus</i> , <i>Ctenopharyngodon idellus</i>	19.61	17.00	本文 This study
白洋淀 Baiyangdian	草鱼、鲢鱼 <i>Ctenopharyngodon idellus</i> , <i>Hypophthalmichthys molitrix</i>	59.3	29.6	[20]
辽东半岛海域-营口 Liaodong Peninsula sea area in Yingkou	小黄鱼 <i>Pseudosciaena polyactis</i>	106.23	103.97	[21]
辽东半岛海域-旅顺 Liaodong Peninsula sea area in Lvshun	小黄鱼、黑鱼等 <i>Pseudosciaena polyactis</i> , <i>Channa argus</i> , etc.	86.87	79.07	[21]
辽东半岛海域-庄河 Liaodong Peninsula sea area in Zhuanghe	梭鱼、鲫鱼等 <i>Sphyraenus</i> , <i>Carassius auratus</i> , etc.	98.13	50.16	[21]
辽东半岛海域-锦州 Liaodong Peninsula sea area in Jinzhou	鲈鱼、箭头鱼 <i>Lateolabrax japonicas</i> , <i>Callionymus</i> , ect.	80.35	38.13	[21]
长江宜昌江段 Yangtze River in Yichang Section	青鱼、草鱼等 <i>Mylopharyngodon piceus</i> , <i>Ctenopharyngodon idellus</i> , ect.	0.26	6.58	[22]
长江口南部 South of the Yangtze River estuary	凤鲚、龙头鱼等 <i>Coilia mystus</i> , <i>Harpadon nehereus</i> , ect.	0.10	0.41	[23]
长江口北部 North of the Yangtze River estuary	凤鲚、龙头鱼等 <i>Coilia mystus</i> , <i>Harpadon nehereus</i> , ect.	0.01	0.03	[23]
杭州湾 Hangzhou bay	凤鲚、龙头鱼等 <i>Coilia mystus</i> , <i>Harpadon nehereu</i> , ect.	0.42	0.27	[23]
多瑙河 Danube	鲤鱼、鲈鱼等 <i>Cyprinus carpio</i> , <i>Lateolabrax japonicus</i> , ect.	188	1 986.2	[24]
瑞典 Sweden	淡水鱼 Freshwater fish	0.91	7.02	[25]
柬埔寨 Cambodia	淡水鱼 Freshwater fish	0.01 ~ 0.22	0.09 ~ 6.91	[26]

表 8 保安湖鱼类肌肉中 OCPs 污染指数

Table 8 Index of organochlorine pesticides pollution in fish muscle of Baoan Lake

鱼类 Fish species	污染指数(P_i) Pollution index (P_i)		综合污染指数(PI) Comprehensive pollution index (PI)
	HCHs	DDTs	
团头鲂 <i>Megalobrama amblycephala</i>	0.74	0.66	0.70
鲫鱼 <i>Carassius auratus</i>	1.90	0.60	1.41
草鱼 <i>Ctenopharyngodon idellus</i>	0.30	3.84	2.72

风险商大于1,说明食用鲫鱼对暴露人群有健康风险,而食用团头鲂和草鱼对人群不存在健康风险。综上可知,重金属和OCPs复合暴露条件下,食用保安湖的这3种鱼均存在一定的潜在致癌风险,致癌

风险鲫鱼>草鱼>团头鲂,同时,食用鲫鱼还会有非致癌危害效应引发的健康风险,食用团头鲂和草鱼不存在这方面的健康风险。

综上所述:(1)保安湖湖区3种鱼类样品中团头

表9 保安湖鱼类肌肉中重金属致癌风险指数(CRI_i)和非致癌目标风险商(Q_i)
Table 9 Heavy metal carcinogenic risk index (CRI_i) and non-carcinogenic risk index (Q_i) in fish muscles of BaoanLake

重金属 Heavy metal	团头鲂 <i>Megalobrama amblycephala</i>		鲫鱼 <i>Carassius auratus</i>		草鱼 <i>Ctenopharyngodon idellus</i>	
	CRI _i (10 ⁻⁶)	Q _i	CRI _i (10 ⁻⁶)	Q _i	CRI _i (10 ⁻⁶)	Q _i
	Cr	3.820	0.001	4.042	0.001	4.190
Cu	-	0.018	-	0.032	-	0.025
Zn	-	0.058	-	0.081	-	0.068
As	1.335	0.306	5.451	1.251	0.890	0.204
Cd	0.011	0.003	0.020	0.005	0.011	0.003
Pb	-	0.096	-	0.077	-	nd
Hg	-	0.077	-	0.092	-	0.046
合计 Total	5.166	0.558	9.513	1.538	5.091	0.346

注:“-”未进行相关值的计算研究;“nd”未检出。

Note: "-" No correlation study; "nd" not detected.

表10 保安湖鱼类肌肉中有机氯农药致癌风险指数(CRI_i)和非致癌目标风险商(Q_i)
Table 10 Organochlorine pesticide carcinogenic risk index (CRI_i) and exposure risk index (Q_i) in fish muscles of Baoan Lake

农药名称 Name of pesticide	团头鲂 <i>Megalobrama amblycephala</i>		鲫鱼 <i>Carassius auratus</i>		草鱼 <i>Ctenopharyngodon idellus</i>	
	CRI _i (10 ⁻⁶)	Q _i	CRI _i (10 ⁻⁶)	Q _i	CRI _i (10 ⁻⁶)	Q _i
	alpha-HCH	nd	nd	nd	nd	nd
belta-HCH	19.82	0.055	31.67	0.088	5.38	0.015
gamma-HCH	nd	nd	19.12	0.035	2.55	0.005
DDE	8.85	0.010	7.80	0.009	33.35	0.037
DDD	nd	nd	nd	nd	nd	nd
DDT	nd	nd	nd	nd	17.89	0.020
合计 Total	28.67	0.062	58.59	0.132	59.17	0.077

表11 保安湖鱼类肌肉中重金属和OCPs复合暴露结果
Table 11 Combined exposure of heavy metals and OCPs in fish muscles of Baoan Lake

污染物 Pollutants	团头鲂 <i>Megalobrama amblycephala</i>		鲫鱼 <i>Carassius auratus</i>		草鱼 <i>Ctenopharyngodon idellus</i>	
	CRI(10 ⁻⁶)	Q	CRI(10 ⁻⁶)	Q	CRI(10 ⁻⁶)	Q
	重金属 Heavy metal	5.166	0.558	9.513	1.538	5.091
有机氯农药 Organochlorine pesticides	28.67	0.062	58.59	0.132	59.17	0.077
合计 Total	33.836	0.62	68.103	1.67	64.261	0.423

鲂和鲫鱼体内可检测出 Cr、Cu、Zn、As、Cd、Pb、Hg 7 种重金属,草鱼体中检测出 6 种重金属,Pb 未检出。根据 GB2762—2017 和 NY5073—2006 中水产品重金属的限量评价,团头鲂和鲫鱼中 As 含量超标,分别超标 0.2 和 3.9 倍,其余重金属含量未超过标准限值。单项污染指数法评价结果表明,3 种鱼体肌肉中 Cu、Cd、Pb 和 Hg 均为无污染,Cr 为轻度污染,Zn 为轻度到中度污染,As 为中度到重度污染;团头鲂和草鱼为中度污染,鲫鱼为严重污染,综合污染程度为鲫鱼>团头鲂>草鱼。

(2)鲫鱼、草鱼体内 OCPs 总的含量相当,分别为 44.03 ng·g⁻¹ ww 和 44.32 ng·g⁻¹ ww,团头鲂农药残留量较少为 21.48 ng·g⁻¹ ww,均超过《无公害食品水产品中有毒有害物质限量》(NY5073—2006)标准,分别超标 0.9 和 2.8 倍。鲫鱼中 HCHs 和草鱼中 DDTs 含量单项污染指数评价结果为重度污染,从综合污染评价来看,团头鲂为中度污染,鲫鱼和草鱼达到重度污染,OCPs 综合污染程度为草鱼>鲫鱼>团头鲂。

(3)鱼样健康风险评估结果表明,3 种鱼样重金属和 OCPs 复合暴露条件下,致癌风险都大于 10⁻⁶,食用这 3 种鱼均存在一定的潜在致癌风险,应持续关注;同时,食用鲫鱼会有非致癌健康风险,食用团头鲂和草鱼不存非致癌健康风险。因此,需进一步研究保安湖鱼类中重金属和有机氯农药的污染来源并进行有效防治,建议有关部门加强对该地区污染防控,并指导居民合理膳食。

通讯作者简介:郗志云(1986-),女,硕士,助理研究员,生态环境部环境规划院长江经济带生态环境联合研究中心成员,主要研究方向为饮用水源保护、流域水环境管理等。

参考文献(References):

- [1] 蔡继晗,李凯,郑向勇,等.水产养殖重金属污染现状及治理技术研究进展[J].水产科学,2010,29(12):749-752
Cai J H, Li K, Zheng X Y, et al. Advances in researches and treatment technology of heavy metals in aquaculture [J]. Fisheries Science, 2010, 29(12): 749-752 (in Chinese)
- [2] Guerin T, Chekri R, Vastel C, et al. Determination of 20 trace elements in fish and other seafood from the French market [J]. Food Chemistry, 2011, 127(3): 934-942
- [3] 陈怀满.土壤-植物系统中的重金属污染[M].北京:科学出版社,1996:185-192
- [4] 薛南冬,王洪波,徐晓白.水环境中农药类内分泌干扰

物的研究进展[J].科学通报,2005,50(22):2257-2266
Xue N D, Wang H B, Xu X B. Progress in study on endocrine disrupting pesticides (EDPs) in aquatic environment [J]. Chinese Science Bulletin, 2005, 50(22): 2257-2266 (in Chinese)

- [5] 国家食品药品监督管理总局. GB2762—2017 食品中污染物限量[S].北京:国家食品药品监督管理总局,2017
- [6] 中华人民共和国农业农村部. NY 5073—2006 无公害食品水产品中有毒有害物质限量[S].北京:中华人民共和国农业农村部,2006
- [7] 中华人民共和国国家卫生健康委员会. 食品中锌限量卫生标准(GB13106—1991)[S].北京:中华人民共和国国家卫生健康委员会,1991
- [8] 杨晓云,温勇,陈晓燕,等.重金属在北江鱼类和底栖动物体内的富集及污染评价[J].环境科学与技术,2010,33(6):194-198
Yang X Y, Wen Y, Chen X Y, et al. Heavy metal enrichment in aquatic organisms of Beijiang River: Its characteristics and pollution evaluation [J]. Environmental Science & Technology, 2010, 33(6): 194-198 (in Chinese)
- [9] 祝惠,阎百兴,张凤英.松花江鱼体中重金属的富集及污染评价[J].生态与农村环境学报,2010,26(5):492-496
Zhu H, Yan B Y, Zhang F Y. Enrichment of heavy metals in fishes of Songhua River and its pollution assessment [J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2010, 26(5): 492-496 (in Chinese)
- [10] 中华人民共和国国家海洋局. HY/T 078—2005 海洋生物质量监测技术规程[S].北京:中国标准出版社,2005
- [11] U.S. Environmental Protection Agency (US EPA). Guidance for Assessing Chemical Contaminant Data for Use in Fish Advisories. Third Edition. Volume 2: Risk Assessment and Fish Consumption Limits [M]. Washington DC: US EPA, 2000
- [12] 刘爽,李骏,龚晨睿,等.湖北省成年居民膳食结构与膳食模式的变迁研究(1997~2011)[C].北京:中国营养学会第十三届全国营养科学大会暨全球华人营养科学家大会,2015
- [13] Wang X L, Sato T, Xing B S, et al. Health risks of heavy metals to the general public in Tianjin, China via consumption of vegetables and fish [J]. Science of the Total Environment, 2005, 350(1/2/3): 28-37
- [14] United States Environmental Protection Agency. Risk-based concentration table [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 2000
- [15] 徐中根,肖明松.重金属在淮河蚌埠段团头鲂体内的蓄积研究[J].农业灾害研究,2012,2(5):44-47

- Xu Z G, Xiao M S. Accumulation of heavy metals in *Megalobrama amblycephala* from the Huaihe River (the section in Bengbu City, East China) [J]. *Agricultural Disaster Research*, 2012, 2(5): 44-47 (in Chinese)
- [16] Hao Y, Chen L, Zhang X L, et al. Trace elements in fish from Taihu Lake, China: Levels, associated risks, and trophic transfer [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, 90: 89-97
- [17] 谢文平, 陈昆慈, 朱新平, 等. 珠江三角洲河网区水体及鱼体内重金属含量分析与评价[J]. *农业环境科学学报*, 2010, 29(10): 1917-1923
- Xie W P, Chen K C, Zhu X P, et al. Evaluation on heavy metal concentrations in water and fishes collected from the waterway in the Pearl River Delta, South China [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2010, 29 (10): 1917-1923 (in Chinese)
- [18] 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 L, Chen F, Ma Q L, et al. Heavy metal pollution and health risk assessment of fish in Huizhou Section of the Dongjiang River [J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2017, 33(1): 70-76 (in Chinese)
- [19] 覃东立, 汤施展, 白淑艳, 等. 东北地区鲤、鲫、草鱼肌肉中重金属含量评价[J]. *农业环境科学学报*, 2014, 33(2): 264-270
- Tan D L, Tang S Z, Bai S Y, et al. Heavy metal concentrations in muscle of fishes from the Northeast China [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2014, 33(2): 264-270 (in Chinese)
- [20] 窦薇, 赵忠宪. 白洋淀几种不同食性鱼类对六六六、DDT的富集[J]. *环境科学进展*, 1996, 4(6): 51-56
- Dou W, Zhao Z X. A study on bioaccumulation of BHC and DDT in fish muscles of different food structure from Baiyangdian Lake [J]. *Advances in Environment Science*, 1996, 4(6): 51-56 (in Chinese)
- [21] 王薇, 李清波, 王晨祥, 等. 辽东半岛海域鱼贝中有机氯农药残留及其风险评估[J]. *生态毒理学报*, 2015, 10(3): 135-143
- Wang W, Li Q B, Wang C X, et al. Residues and risk assessment of organochlorine pesticides in fish and shellfish samples of Liaodong Peninsula [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2015, 10(3): 135-143 (in Chinese)
- [22] 李荣, 徐进, 甘金华, 等. 长江宜昌江段几种鱼类体中六六六、滴滴涕的残留水平[J]. *长江流域资源与环境*, 2008, 17(1): 94-100
- Li R, Xu J, Gan J H, et al. Research on HCH and DDT residues in fishes of Yichang Section of the Yangtze River [J]. *Resources and Environment in the Yangtze Basin*, 2008, 17(1): 94-100 (in Chinese)
- [23] 戴国梁, 朱启琴, 杨鸿山. 长江口及其邻近海域海洋生物重金属和有机氯农药的分析与评价[J]. *海洋环境科学*, 1991, 10(3): 20-26
- Dai G L, Zhu Q Q, Yang H S. Analysis and evaluation of heavy metals and organic pesticide in marine life of the Yangtze Estuary and its adjacent sea areas [J]. *Marine Environmental Science*, 1991, 10(3): 20-26 (in Chinese)
- [24] Adrian C, Adriana G, Orieta H, et al. Levels and distribution of organochlorine pesticides polychlorinated biphenyls and polybrominated diphenyl ethers in sediments and biota from the Danube Delta, Romania [J]. *Environmental Pollution*, 2005, 49: 234-242
- [25] Darnerud P O, Atuma S, Aune M, et al. Dietary intake estimations of organohalogen contaminants (dioxins, PCB, PBDE and chlorinated pesticides, e.g. DDT) based on Swedish market basket data [J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2006, 44(9): 1597-1606
- [26] Monirith I, Nakata H, Tanabe S, et al. Persistent organochlorine residues in marine and freshwater fish in Cambodia [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1999, 38(7): 604-612

◆