

Food Safety Risk Assessment of the Heavy Metals in Aquatic Products in Tianjin

Haining Gu¹, Zhebing Hu¹, Cheng Chen¹, Miaomiao Huo^{2*}, Junping Wang^{2*}

¹Catering Service Branch of CNOOC Energy Technology & Services Limited, Tianjin

²Food Engineering and Biotechnology College, Tianjin University of Science and Technology, Tianjin

Email: *50955690@qq.com, *potatowjp@sina.com

Received: Jan. 12th, 2017; accepted: Feb. 12th, 2017; published: Feb. 15th, 2017

Abstract

Heavy metal pollution situation and intake risk of aquatic products were studied in Tianjin. A total of 124 of four kinds of aquatic products were sampled in April, May, June 2014. The concentrations of Cr, As, Cd, Hg, Pb in edible muscles were measured by ICP-MS. Single factor pollution index and metal pollution index were used to evaluate the degree of pollution, and the dietary heavy metal exposure from aquatic products and the health risk were assessed by Oracle Crystal Ball based on Monte Carlo simulation method. MPI results showed that heavy metal pollution in crustacean was the most severe, followed by marine fish, mollusc and freshwater fish. The mean contents of Cr are 0.3200 mg/kg, As being 1.3443 mg/kg, Cd being 0.0516 mg/kg, Hg being 0.0127 mg/kg and Pb being 0.2016 mg/kg. The contents of As reached the criteria of Heavy Pollution; Cd in crustacean and freshwater fish belonged to Moderate Pollution, Light Pollution in marine fish; Pb in crustacean belonged to Moderate Pollution, Light Pollution in marine fish and mollusc; Cr in marine fish belonged to Light Pollution. Risk assessment results showed that the average of risk quotient of Cr, As, Cd, Hg, Pb by dietary intake of aquatic was less than 1, within acceptable levels, while high levels of exposure As at the 95th percentile, 97.5th percentile and 99th percentile were higher than 1, indicating that the dietary exposure of heavy metals only by aquatic consumption was probably to bring about severe health risk, which should attract the attention of residents.

Keywords

Aquatic Products, Heavy Metal, Pollution Distribution, Risk Assessment

天津市水产品重金属安全风险评估

顾海宁¹, 胡哲斌¹, 陈晨¹, 霍苗苗^{2*}, 王俊平^{2*}

¹中海油能源发展股份有限公司配餐服务分公司, 天津

²天津科技大学食品工程与生物技术学院, 天津

Email: *50955690@qq.com, *potatowjp@sina.com

*通讯作者。

收稿日期：2017年1月12日；录用日期：2017年2月12日；发布日期：2017年2月15日

摘要

为了了解天津市水产品重金属污染现状以及居民膳食摄入的风险，2014年4~6月份采集了海水鱼类、淡水鱼类、甲壳类和软体动物四类水产品共124个样品，采用ICP-MS测定了可食部分中Cr、As、Cd、Hg和Pb五种重金属含量。采用单因子污染指数和重金属污染指数对污染程度进行评价，应用基于Monte Carlo模拟的Crystal Ball风险评估软件对居民通过食用水产品摄入五种重金属进行风险评估。污染结果显示，甲壳类 > 海水鱼类 > 软体动物 > 淡水鱼类，各类水产品中Cr的平均含量为0.3200、As的平均含量为1.3443、Cd的平均含量为0.0516、Hg的平均含量为0.0127、Pb的平均含量为0.2016，经过计算污染指数，各类水产品As污染均属于重度污染，Cd在甲壳类和淡水鱼类属于中度污染，在海水类属于轻度污染；Pb在甲壳类属于中度污染，在海水鱼类和软体动物属于轻度污染；Cr在海水鱼类和软体动物属于轻度污染。风险评估显示，居民通过食用水产品途径摄入Cr、As、Cd、Hg、Pb风险商的平均值均小于1，处于可以接受的水平内，但As的高暴露水平95百分位、97.5百分位和99百分位均高于1，说明居民通过食用水产品途径摄入As存在一定的潜在风险，应该引起重视。

关键词

水产品，重金属，污染分布，风险评估

Copyright © 2017 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

水产品是一种高蛋白低脂肪的动物性蛋白，其市场和消费群体逐步扩大，需求量逐年增加。但是随着现代化工业的发展，使得水生环境不断恶化，水产品的质量受到严重污染，尤其是化学污染物。重金属作为一种典型的化学污染物，具有生物累积性、不可降解性等特点[1]，可以通过食物链直接或间接地影响着人们的饮食安全和身体健康。因此水产品中重金属污染水平以及人体暴露风险评估引起人们的高度关注和重视。

目前，国际上对化学污染物的健康风险评估的方法主要分为两类：以定量模型为主和以不确定性模型为主的健康风险评估方法[2]。定量模型是采用人群某参数点评估值进行定量计算，而 Monte Carlo 模拟是利用食品消费数据和残留浓度数据建立模型，然后进行模拟抽样得到危害在群体中发生的概率分布[3]。对风险的不确定性进行更为直观的表述，更符合风险的不确定性本质，且具有预测性，因而更具有优势[4]。USEPA 已经将 Monte Carlo 模拟方法定为风险分析的基本方法[5]。

天津位于渤海西部海域，地跨海河两岸，是华北水产品生产和消费的主要地区，但有关水产品重金属污染以及居民膳食水产品重金属的健康风险评估方面的报道较少。因此，本文在天津市售水产品重金属含量检测结果的基础上，应用基于 Monte Carlo 模拟的 Crystal Ball 风险评估软件对以水产品为来源的 Cr、As、Cd、Hg 和 Pb 五种重金属的膳食暴露风险评估进行了初步研究。

2. 材料与方法

2.1. 样品的采集及处理

2014年4~6月份对天津市主要的大型海鲜市场、农贸市场以及大型超市的水产品进行随机抽样，采

集海水鱼类、淡水鱼类、甲壳类和软体动物四类水产品共 124 个样品。

2.2. 样品的检测

取样品可食部分在捣碎机中捣碎匀浆，前处理方法采用微波消解仪(MARSX6.0, 美国 CEM 公司)，检测方法采用电感耦合等离子体质谱仪 ICP-MS (7500cx, 美国安捷伦公司)。五种重金属的检出限分别为 0.001 mg/kg、0.004 mg/kg、0.0005 mg/kg、0.002 mg/kg、0.001 mg/kg。

2.3. 污染程度评价

参考最新国家标准 GB2762-2012《食品中污染物限量》，采用单因子污染指数法和金属污染指数法进行重金属污染评价[6]。

(1) 单因子污染指数法

评价单个重金属元素污染状况时，一般采用单因子污染指数法，计算公式为：

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

式中， P_i 表示水产品中重金属的污染指数； C_i 表示水产品中重金属的实测含量； S_i 一水产品中重金属的标准限值。

当 $P_i < 0.2$ 时，表明重金属处于正常的背景值范围；当 $0.2 \leq P_i \leq 0.6$ 时，表明处于轻污染状态；当 $0.6 < P_i < 1.0$ ，为中度污染水平； $P_i \geq 1.0$ 时，则为重度污染。

(2) 金属污染指数法

评价水产品中重金属的总体水平时，采用金属污染指数法(MPI)，计算公式为：

$$X_{MPI} = \sqrt[n]{C_1 \times C_2 \times C_3 \times \dots \times C_i} \quad (2)$$

式中， C_n 表示水产品中重金属 i 的浓度，金属污染指数可用于比较不同种生物体之间重金属含量的差异性。

2.4. 膳食暴露量的概率评估

$$EDI = \frac{C \times IR \times EF \times ED}{BW \times AT \times 1000} \quad (3)$$

式中，EDI 表示人体重金属的每日暴露量，mg/kg·d；C 表示水产品中重金属的含量，mg/kg；IR 表示水产品的平均膳食量，g/d；EF (Exposure Frequency) 表示人群暴露频率，d/year；ED (Exposure Duration) 表示暴露持续时间，year；BW 表示人体平均体重，kg；AT (Average Time) 表示平均暴露时间，day，通常等于人的平均寿命。

风险描述

采用风险商(HQ)定量评估通过水产品途径的非致癌健康风险。其数学表达式为：

$$HQ = \frac{EDI}{RfD} \quad (4)$$

式中，HQ 表示风险值；EDI 表示人体重金属的每日暴露量，mg/kg·d；RfD 表示参考剂量，mg/kg·d。当 $HQ < 1$ 时，可认为该重金属对暴露人群没有明显的健康风险；当 $HQ \geq 1$ 时，可认为该重金属对暴露人群存在健康风险。

3. 结果与讨论

3.1. 重金属污染状况

3.1.1. 重金属污染总体分布

水产品重金属的总体分析如表 1 所示。Cr、As、Cd、Hg 和 Pb 五种重金属均有检出(见表 1)，检出

率超过 50%。Cr 和 Hg 均未超标，Pb 的超标率达到 10%以上，As 超标现象突出，超标率超过 50%，表明该地区水产品已经受到较为严重的污染。从重金属含量的平均值来看，As > Pb > Cr > Cd > Hg。

3.1.2. 不同种类水产品重金属含量

不同种类水产品重金属含量如表 2 所示。对于水产品中重金属含量的平均含量来看，Cr 含量表现为软体动物 > 海水鱼类 > 甲壳类 > 淡水鱼类；As 含量表现为海水鱼类 > 甲壳类 > 软体动物 > 淡水鱼类；Cd 含量表现为甲壳类 > 淡水鱼类 > 海水鱼类 > 软体动物；Hg 含量表现为甲壳类 > 海水鱼类 > 淡水鱼类 > 软体动物；Pb 含量表现为甲壳类 > 软体动物 > 海水鱼类 > 淡水鱼类。

3.2. 重金属污染评价

水产品重金属单因子污染指数与重金属污染指数结果如表 3 所示。五种重金属中 As 污染最为严重，各类水产品均属于重污染；海水鱼类 Hg 属于正常的背景范围，Cr、Cd 和 Pb 属于轻度污染；淡水鱼类 Cr、Hg 和 Pb 属于正常的背景范围，Cd 属于中度污染；甲壳类 Cr 和 Hg 属于正常的背景范围，Cd 和 Pb 属于中度污染；软体动物 Cd 和 Hg 属于正常的背景范围，Cr 和 Pb 属于轻度污染。水产品的 MPI 值反映了四种不同种类水产品重金属污染程度的差异，结果表明污染顺序为甲壳类 > 海水鱼类 > 软体动物 > 淡水鱼类，其中甲壳类污染程度最高，淡水鱼类污染程度最低。

Table 1. Overall analysis of aquatic products heavy metal content

表 1. 水产品重金属含量的总体分析

重金属元素	含量范围(mg/kg)	平均值(mg/kg)	中位值(mg/kg)	标准差(mg/kg)	检出率(%)	超标率(%)
Cr	0.0032~1.5881	0.3200	0.2337	0.3362	100	0
As	0.0225~8.7230	1.3443	1.1186	1.3255	100	76.6
Cd	0.0000~0.7067	0.0516	0.0109	0.1175	87.1	9.7
Hg	0.0000~0.1175	0.0127	0.0057	0.0225	99.2	0
Pb	0.0004~1.0020	0.2016	0.1064	0.2354	100	11.3

Table 2. Heavy metal content of different kinds of aquatic products

表 2. 不同种类水产品重金属含量(平均值±标准差 mg/kg)

水产种类	Cr	As	Cd	Hg	Pb
海水鱼类	0.3261 ± 0.2975	1.6033 ± 1.2402	0.0280 ± 0.0498	0.0129 ± 0.0199	0.1873 ± 0.2301
淡水鱼类	0.0981 ± 0.0909	0.1112 ± 0.0706	0.0721 ± 0.1141	0.0063 ± 0.0016	0.0883 ± 0.0635
甲壳类	0.1927 ± 0.1505	1.2160 ± 1.6850	0.1273 ± 0.2168	0.0174 ± 0.0341	0.2562 ± 0.2714
软体动物	0.6274 ± 0.5876	0.6966 ± 0.6054	0.0272 ± 0.0322	0.0050 ± 0.0039	0.2233 ± 0.2281

Table 3. Aquatic single factor pollution index of heavy metals and heavy metal pollution index

表 3. 水产品重金属单因子污染指数与重金属污染指数

水产种类	单因子污染指数(Pi)					污染指数
	Cr	As	Cd	Hg	Pb	MPI
海水鱼类	0.163	16.033	0.280	0.026	0.375	0.129
淡水鱼类	0.049	1.112	0.721	0.013	0.177	0.054
甲壳类	0.096	2.432	0.255	0.035	0.512	0.168
软体动物	0.313	1.393	0.054	0.010	0.223	0.106

3.3. 膳食摄入水产品重金属的风险评估

膳食暴露量评估

(1) 数据来源与参数设置

运用 Crystal Ball 软件, 根据水产品中五种重金属含量检测数据建立模型, 按照表 4 中的暴露参数进行设置, 采用 Monte Carlo 模拟方法进行模拟抽样, 过程循环 10,000 次, 天津市居民膳食水产品摄入 Cr、As、Cd、Hg 和 Pb 五种重金属的日暴露量与风险商模拟结果见表 5 与图 1~图 5。

表 5 中列出了五种重金属日暴露量的平均值、第 5 百分位数、第 50 百分位数、第 90 百分位数、第 95 百分位数和第 99 百分位数。天津市居民膳食水产品摄入 Cr、As、Cd、Hg 和 Pb 五种重金属的日暴露量的平均值分别为 2.390 E-4 mg/kg·d, 1.035 E-3 mg/kg·d, 4.008 E-5 mg/kg·d, 8.870 E-6 mg/kg·d 和 1.682 E-4 mg/kg·d。

由图 1~图 5 可以看出, 天津市居民膳食水产品摄入 Cr、As、Cd、Hg 和 Pb 五种重金属风险商的平均值均小于 1, 表明处于安全水平之内; 在 95 百分位、97.5 百分位和 99 百分位高暴露水平下, Cr、Cd、

Table 4. The calculation of daily exposure and hazard quotient through diet

表 4. 天津市居民膳食水产品重金属的日暴露量与风险商的计算

计算参数	单位	数值	来源
水产品中 Cr 含量 C	mg/kg	平均值 = 0.2001, 标准差 = 0.2593	本文
水产品中 As 含量 C	mg/kg	平均值 = 0.9929, 标准差 = 1.1829	本文
水产品中 Cd 含量 C	mg/kg	平均值 = 0.0512, 标准差 = 0.1379	本文
水产品中 Hg 含量 C	mg/kg	平均值 = 0.0533, 标准差 = 0.1780	本文
水产品中 Pb 含量 C	mg/kg	平均值 = 0.1219, 标准差 = 0.2169	本文
水产品每日摄入量 IR	kg/d	46.4	文献[7]
暴露频率 EF	d/year	350	文献[8]
暴露持续时间 ED	year	70	文献[8]
拉平时间 AT	d	25,550	文献[8]
体重 BW	kg	60	文献[7]
暴露量 EDI	mg/kg·d	$EDI = \frac{C \times IR \times EF \times ED}{BW \times AT \times 1000}$	公式 4
参考摄入量 RfD	mg/kg·d	常数	表 1
风险商 HQ	-	$HQ = \frac{EDI}{RfD}$	公式 5

Table 5. Daily exposure of heavy metal exposure through diet intake of aquatic products in Tianjin

表 5. 天津市居民膳食水产品重金属日暴露量 EDI (mg/kg·d)

重金属元素	平均值	P5	P50	P90	P95	P99
Cr	2.390 E-4	2.262 E-4	1.561 E-4	5.194 E-4	7.183 E-4	1.333 E-3
As	1.035 E-3	5.307 E-5	7.139 E-4	2.415 E-3	3.112 E-3	4.879 E-3
Cd	4.008 E-5	2.048 E-7	9.419 E-6	1.073 E-4	1.184 E-4	4.457 E-4
Hg	8.870 E-6	4.560 E-7	4.267 E-6	2.093 E-5	3.197 E-5	7.220 E-5
Pb	1.682 E-4	8.297 E-6	8.079 E-5	3.892 E-4	5.904 E-4	1.268 E-3

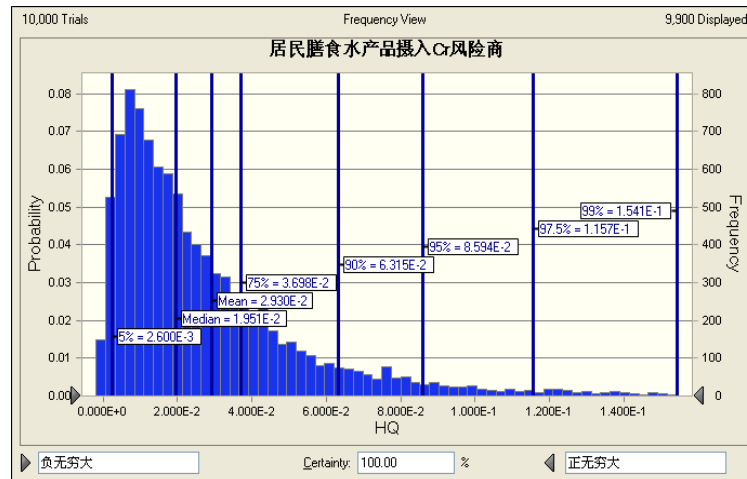


Figure 1. Cr hazard quotient distribution through diet intake of aquatic products
图 1. 居民膳食摄入水产品 Cr 风险概率分布

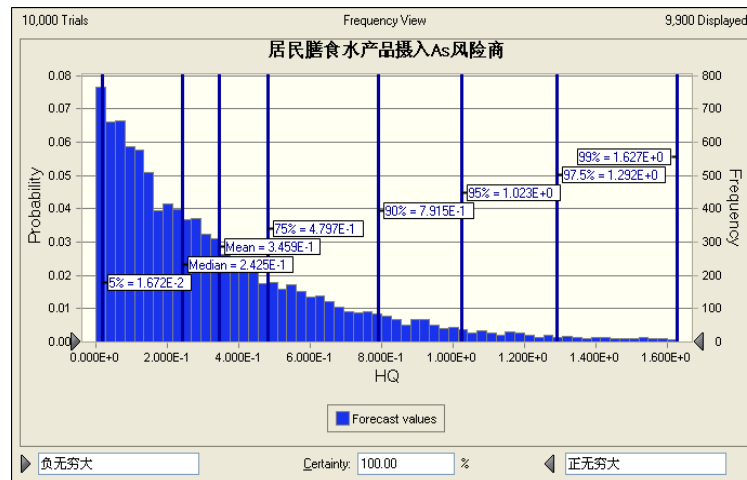


Figure 2. As hazard quotient distribution through diet intake of aquatic products
图 2. 居民膳食摄入水产品 As 风险概率分布

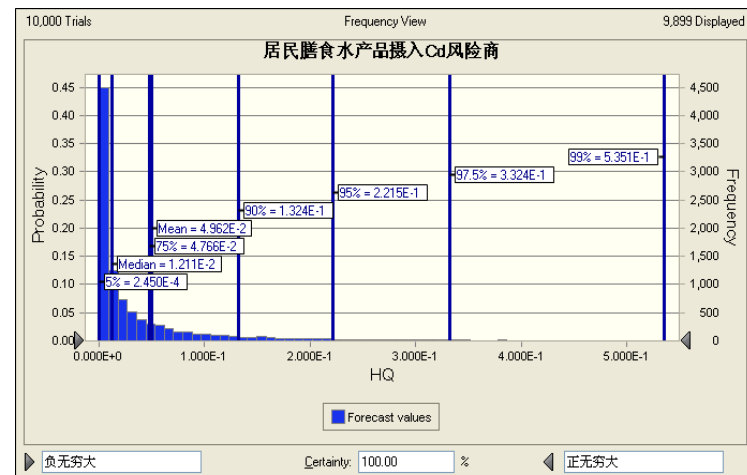


Figure 3. Cd hazard quotient distribution through diet intake of aquatic products
图 3. 居民膳食摄入水产品 Cd 风险概率分布

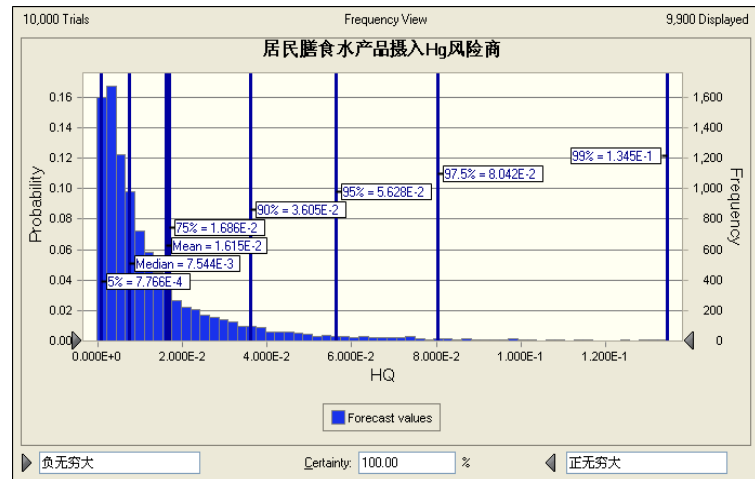


Figure 4. Hg hazard quotient distribution through diet intake of aquatic products
图 4. 居民膳食摄入水产品 Hg 风险概率分布

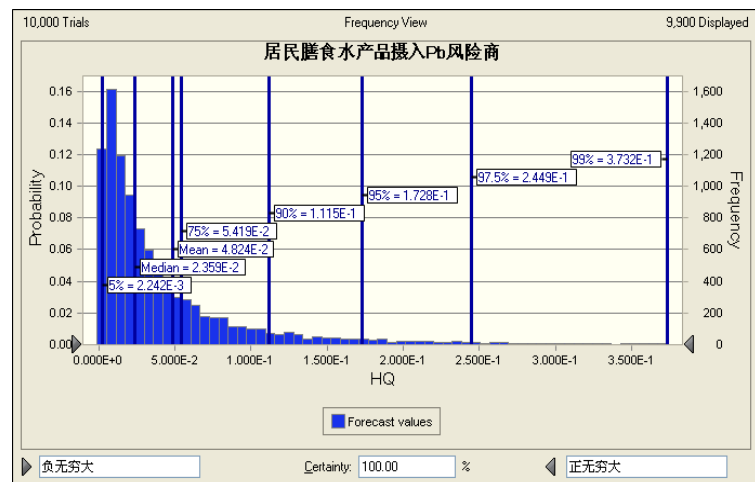


Figure 5. Pb hazard quotient distribution through diet intake of aquatic products
图 5. 居民膳食摄入水产品 Pb 风险概率分布

Hg 和 Pb 的风险商也均小于 1，说明居民通过膳食摄入水产品 Cr、Cd、Hg、Pb 的潜在风险较小或没有潜在风险；但是 As 的 95 百分位、97.5 百分位和 99 百分位高暴露水平都高于 1，说明居民通过膳食摄入水产品 As 存在较大的潜在风险。

4. 结论

用 MPI 评价不同种类水产品重金属的污染程度，研究显示，天津市水产品重金属污染的总体现状为甲壳类 > 海水鱼类 > 软体动物 > 淡水鱼类，这与不同种类水生动物生存环境、生活习性和对特定重金属的累积能力有关。

各种水产品重金属中 As 污染最为严重，四种水产品均属于重度污染；Cd 在甲壳类和淡水鱼类属于中度污染，在海水类属于轻度污染；Pb 在甲壳类属于中度污染，在海水鱼类和软体动物属于轻度污染；Cr 在海水鱼类和软体动物属于轻度污染。

概率评估结果表明天津居民膳食水产品摄入 Cr、Cd、Hg 和 Pb 的风险商的平均值都小于 1，说明处于可以接受的水平内；As 的风险商的平均值小于 1，但是 As 的高暴露水平 95 百分位、97.5 百分位和 99

百分位均高于 1,说明居民通过食用水产品途径摄入 As 存在一定的潜在风险,应该引起居民的高度重视。

参考文献 (References)

- [1] 彭加喜, 徐向荣, 刘金玲, 等. 红海湾海产品体内重金属水平及人体暴露风险评估[J]. 生态科学, 2014, 33(5): 825-831.
- [2] 张德新, 马红梅, 何正宇. 基于 Monte Carlo 模拟法对大米途径摄入镉的风险评估[J]. 环境卫生学, 2013, 3(1): 40-44.
- [3] 刘发欣. 区域土壤及农产品重金属的人体健康风险评估[D]: [硕士学位论文]. 四川: 四川农业大学, 2007: 43-69.
- [4] 钱永忠, 李耘, 陈晨. 应用于农药残留对人体暴露评估的蒙特卡罗方法及其进展[J]. 农业质量标准, 2007, 5(5): 44-47.
- [5] 刘满威. 农产品中重金属风险评估的研究进展[J]. 农业环境科学学报, 2007, 26(1): 15-18.
- [6] 吴萍萍. 淡水鱼及其生长环境中重金属分布与膳食暴露评估[D]: [硕士学位论文]. 浙江: 浙江大学, 2014.
- [7] 金水高. 中国居民营养与健康状况调查报告之十 2002 营养与健康状况数据集[M]. 北京: 人民卫生出版社, 2008.
- [8] USEPA (1991) Risk Assessment Guidance for Superfund (RAGS). Vol. 1, Human Health Evaluation Manual Supplemental Guidance: Standard Default Exposure Factors. OSWER Directive 9285.6-03[R]. United States Environmental Protection Agency, Washington DC, Office of Emergency and Remedial Response.

期刊投稿者将享受如下服务:

1. 投稿前咨询服务 (QQ、微信、邮箱皆可)
2. 为您匹配最合适的期刊
3. 24 小时以内解答您的所有疑问
4. 友好的在线投稿界面
5. 专业的同行评审
6. 知网检索
7. 全网络覆盖式推广您的研究

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱: hjfn@hanspub.org