

福建三都湾渔业环境和养殖生物体总汞含量及人体暴露健康风险评价

李秀珠

(福建省水产研究所, 福建 厦门 361012)

摘要: 由于汞的生物甲基化和在食物链中的积累、放大作用, 水产类膳食汞的摄入被认为是人体甲基汞负荷的主要来源。三都湾位于福建省东北部沿海, 各类水产生物养殖面积 1.5 万 hm^2 , 年产量 22.5 万 t。为评估甲基汞的健康风险, 2004 年在该湾采集海水样品 9 个、表层沉积物样品 11 个、养殖鱼类样品 31 个以及养殖贝类样品 4 个, 用原子荧光光度法进行海水、沉积物和养殖生物总汞含量测定, 对三都湾渔业环境汞污染现状和水产品质量安全进行评价。三都湾海水总汞含量范围在 $0.015 \sim 0.046 \mu\text{g/L}$, 计 $(0.027 \pm 0.009) \mu\text{g/L}$; 沉积物总汞含量范围在 $0.055 \sim 0.113 \text{ mg/kg}$, 计 $(0.074 \pm 0.013) \text{ mg/kg}$, 养殖贝类总汞含量范围在 $0.004 \sim 0.011 \text{ mg/kg}$, 计 $(0.008 \pm 0.005) \text{ mg/kg}$, 与福建沿岸近 20 年来的其他相关调查结果相接近。养殖鱼类总汞含量范围在 $0.012 \sim 0.084 \text{ mg/kg}$, 计 $(0.032 \pm 0.006) \text{ mg/kg}$ 。通过调查数据的对比分析, 三都湾鱼、贝类体总汞平均含量近 30 年来一直波动于鱼类汞含量的下限 (0.05 mg/kg) 区间, 与海水和沉积物汞的含量水平和变化趋势基本相对应; 与美国、日本最近公布的鱼、贝类汞含量进行比较, 三都湾牡蛎汞平均含量与日本的太平洋牡蛎和美国的牡蛎较接近, 但三都湾牡蛎汞含量的最大值 (0.011 mg/kg) 比日本、美国的牡蛎汞含量的最大值 (0.250 mg/kg 和 0.130 mg/kg) 低得多; 三都湾大黄鱼、鲞汞平均含量 (0.026 mg/kg 和 0.036 mg/kg) 和最大含量 (0.084 mg/kg 和 0.053 mg/kg) 均比美国的大西洋石首鱼 (0.072 mg/kg 和 0.148 mg/kg) 低; 三都湾的鲈鱼汞平均含量 (0.056 mg/kg) 低于日本的鲈鱼 (0.100 mg/kg) 和美国的红鲈 (0.128 mg/kg)。后二者汞含量最大值 (0.510 mg/kg 和 0.625 mg/kg) 分别是三都湾养殖鲈鱼 (0.075 mg/kg) 的 6 至 8 倍。三都湾海水、沉积物、贝类总汞含量符合国家环境质量标准, 养殖鱼、贝类符合国家、WHO 及欧盟的水产品汞限量要求。以 $100 \text{ g}/(\text{人} \cdot \text{d})$ 的水产类摄食量估算, 食用鱼、贝类汞摄入量分别占 JECFA 推荐的汞临时性周可承受摄入量 PTWI 值的 8.4% 和 2.9%; 用总汞数据估算甲基汞摄入量分别占 PTWI 值的 26.4% 和 9.0%。采用美国 EPA 设定的甲基汞 RfD 值估算, 食用鱼、贝类甲基汞摄入量分别占 60.3% 和 20.6%。三都湾沿海城乡居民水产品消费引起的汞暴露健康风险小。[中国水产科学, 2008, 15(6): 961-969]

关键词: 汞; 甲基汞; 养殖生物; 三都湾; 福建省; 健康风险评价

中图分类号: X82

文献标识码: A

文章编号: 1005-8737-(2008)06-0961-09

在渔业生态环境中, 汞是毒性很高的污染物, 国内有关的环境质量标准都将其列为必须控制的指标^[1-4]。由于水体中的汞可以通过微生物的作用转化成甲基汞而被海洋生物吸收, 并通过食物链逐级积累、放大从而达到危害人体健康的水平。因此, 水产类膳食汞的摄入被认为是人体甲基汞负荷的主要来源^[5-7]。自从日本“水俣病”事件后, 水环境及水产品中汞的含量以及人体暴露的健康风险评价一直是国内外学者研究的热点^[8-12]。有关国家

和国际组织从产品质量安全角度出发, 规定了鱼贝类产品汞或甲基汞的最高限量^[13-14], 同时根据汞或甲基汞对人体健康效应之间关系的研究成果, 推荐了汞或甲基汞最大临时性周可承受摄入量 (PTWI 值) 和甲基汞参考剂量 (RfD 值), 以期保护公众安全, 特别是避免敏感人群受甲基汞暴露的风险^[15-16]。

三都湾位于福建省东北部沿海, 海湾总面积为 720 km^2 , 各类水产生物养殖面积 1.5 万 hm^2 , 年产量 22.5 万 t。湾内有全国最大的大黄鱼 (*Pseudosciaena*

收稿日期: 2008-06-01; 修订日期: 2008-07-30.

基金项目: 农业部重点渔业水域环境监测专项基金资助; 三都湾生态监控区计划项目 (闽海渔 2004-14).

作者简介: 李秀珠 (1955-), 女, 高级工程师, 主要从事渔业环境与水产品质量安全监测与研究. E-mail: lxz99@126.com

crocea) 养殖基地和省级官井洋大黄鱼繁殖保护区, 是福建沿海重要渔业水域。20 世纪福建省组织了 3 次大规模的海洋调查包括对三都湾海洋环境中汞水平的调查^[17-18], 但有关汞在养殖鱼类体内的累积水平和人体暴露健康风险评价迄今未见文献报道。本研究根据 2004 年三都湾生态监控区项目和福建省海洋环境趋势性监测中由作者完成的三都湾海水、沉积物环境和养殖鱼、贝类体内总汞监测数据, 根据现行的国家标准对三都湾渔业环境中汞的污染现状及其在养殖鱼、贝类体内的水平进行评价, 并参照 FAO/WHO 联合食品添加剂专家委员会

(JECFA) 的汞和甲基汞最大临时性周可承受摄入量 PTWI 值以及美国 EPA 的甲基汞参考剂量 RfD 值, 对沿海居民水产品消费汞暴露风险进行评价, 避免贝类水产品高消费人群受到甲基汞危害健康。

1 材料与方法

1.1 样品的采集

福建三都湾海水、沉积物、养殖生物采样站位如图 1 所示, 采样时间为 2004 年。表 1 详细列出各站位地点和采样内容。所有样品的采集均参照海洋监测规范方法^[19]。

表 1 三都湾海水、沉积物、养殖生物采样站位和采样内容
Tab. 1 Sampling sites of seawater, sediments and cultured creatures at Sandu Bay and samples

站号 Number	位置 Location	样品 Sample
1	湾口大黄鱼保护区 Bay Estuary Large Yellow Croaker Protection Zone	水、沉积物 Water, Sediment
2	东安鱼类网箱养殖区 Dong' an Fish Cage Culture Zone	水、沉积物、鲢鱼、大黄鱼 Water, Sediment, <i>N. miichthioides</i> , <i>P. Crocea</i>
3	沙江贝类养殖区、鱼类网箱养殖区 Shajiang River Shellfish Culture Zone, Fish Cage Culture Zone	沉积物、僧帽牡蛎、大黄鱼、鲢鱼、鲈鱼 Sediments, <i>S. cucullata</i> , <i>P. Crocea</i> , <i>N. miichthioides</i> , <i>L. japonicus</i>
4	七星沙湾大黄鱼保护区 Qixingsha Bay Large Yellow Croaker Protection Zone	水、沉积物 Water, Sediment
5	蕉城区青山鱼类网箱养殖区、大黄鱼保护区 Jiaocheng District Qingshan Fish Cage Culture Zone, Large Yellow Croaker Protection Zone	大黄鱼、鲈鱼 <i>P. Crocea</i> , <i>L. japonicus</i>
6	蕉城区渔潭鱼类网箱养殖区、大黄鱼保护区 Jiaocheng District Yutan Fish Cage Culture Zone, Large Yellow Croaker Protection Zone	水、沉积物、鲢鱼、大黄鱼 Water, Sediment, <i>N. miichthioides</i> , <i>P. Crocea</i>
7	蕉城区二都贝类养殖区 Jiaocheng District Erdu Shellfish Culture Zone	沉积物、僧帽牡蛎 Sediments, <i>S. cucullata</i>
8	蕉城区橄榄屿附近鱼类网箱养殖区 Fish Cage Culture Zone near Jiaocheng District Ganlan Island	水、沉积物、鲈鱼、大黄鱼 Water, Sediments, <i>L. japonicus</i> , <i>P. Crocea</i>
9	福安畚斗坑鱼类网箱养殖区 Fu' an Fengdoukeng Fish Cage Culture Zone	水、沉积物、鲢鱼、大黄鱼 Water, Sediment, <i>N. miichthioides</i> , <i>P. Crocea</i>
10	福安岱岐头鱼类网箱养殖区 Fu' an Daiqitou Fish Cage Culture Zone	沉积物、鲢鱼、大黄鱼 Sediment, <i>N. miichthioides</i> , <i>P. Crocea</i>
11	霞浦傅竹鱼类网箱养殖区 Xiapu Fuzhu Fish Cage Culture Zone	鲢鱼、大黄鱼 <i>N. miichthioides</i> , <i>P. Crocea</i>
12	福安沙湾贝类养殖区 Fu' an Sha Bay Shellfish Culture Zone	沉积物、僧帽牡蛎 Sediment, <i>S. cucullata</i>
13	樟湾贝类养殖区 Zhang Bay Shellfish Culture Zone	沉积物、缢蛏 Sediment, <i>S. constricta</i>

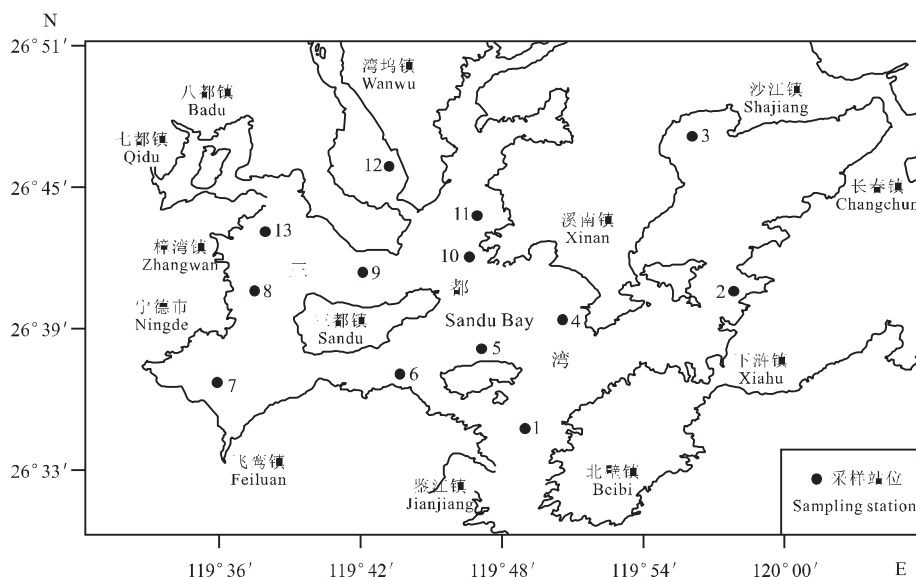


图1 福建三都湾海水、沉积物、养殖生物采样站

Fig. 1 Sampling stations of seawater, sediments and cultured species at Sandu Bay in Fujian province

三都湾网箱鱼类养殖区设置 8 个采样站, 其中霞浦海区 3 个 (2、3、11 号站), 蕉城海区 3 个 (5、6、8 号站), 福安海区 2 个 (9、10 号站)。于 2004 年 4 月和 8 月, 根据各区现有养殖鱼类品种, 每个站分别采集 1~3 种鱼类样品。本次采集到的鱼类样品有: 大黄鱼、鲩 (*Nibea miichthioides*) 和鲈 (*Lateolabrus japonicus*) 3 个种类共 31 个样品。每个样品体质量 1~2 kg, 样品采集后放入冷藏箱中当日送回实验室, 取鱼肌肉部分进行匀浆处理成分析样放在冷柜中 -10℃ 下保存至分析。

2004 年 8 月, 在三都湾的二都、樟湾、沙湾和霞浦沙江贝类养殖区 (3、7、12、13 号站) 现场采集成品鲜活贝类样品, 事先用养殖区海水洗去贝类表壳上附着的泥土和杂物后, 将其装入经处理干净的聚乙烯塑料袋中, 冷藏保存运送到实验室。贝类物种为缢蛏 (*Sinonovacula constricta*) 和僧帽牡蛎 (*Saccostrea cucullata*), 单点采集贝类量为 2~5 kg。剥取鲜活贝, 收集全部体液和软组织匀浆后冷冻保存待分析。

2004 年 8 月在三都湾除 5、11 号站外的其他 11 个站采集表层沉积物样品, 每个样品约 300 g, 放入经处理干净的 500 mL 广口磨口玻璃瓶中, 盖

紧瓶盖, 放入样品箱中运回实验室保存至分析。

2004 年 8 月, 在三都湾 1、2、4、6、8、9 号站采集海水样品 9 个 (其中水深 5 m 以上采表、底层), 每个样品约 300 mL, 水样装入 350 mL 磨口玻璃瓶, 加 H_2SO_4 至 $pH < 2$, 送回实验室待分析。

1.2 样品测定方法

海水、沉积物、生物样品总汞的样品消解和分析测定方法分别按照国家海洋局 2002 年 12 月编制的原子荧光法¹⁾进行。测定用仪器为 AFS-820 型双道原子荧光光度计, 北京吉大小天鹅仪器有限公司生产。分析方法参加国家海洋局海洋环境监测中心组织的实验室标准互校和外控样考核, 样品分析的标准差均在合格判定范围; 方法经国家计量认证。

为保证各介质样品的分析数据质量, 样品分析的同时, 均分析国家标准物质进行质量控制。

1.3 汞暴露健康风险评价方法

三都湾养殖区环境汞污染现状采用《海水增养殖区监测技术规程》和《海洋生物质量监测技术规程》规定的单因子污染指数评价方法²⁾, 即评价模式 $P_i = \frac{C_i}{C_0}$, 其中 P_i 为海水、沉积物和贝类汞污染指数; C_i 为相应介质的总汞实测值, C_0 分别为《海水

1) 国家海洋局,《海洋生物体中汞的测定—原子荧光法》、《海水中汞的测定—原子荧光法》、《沉积物中汞的测定—原子荧光法》, 2002.

2) 国家海洋局,《海水增养殖区监测技术规程》、《海洋生物质量监测技术规程》, 2002.

水质标准》第二类汞标准值 (0.2 $\mu\text{g/L}$)、《海洋沉积物质量》和《海洋生物质量》第一类汞标准值 (0.20 mg/kg 和 0.05 mg/kg)。污染指数 $P_i < 0.5$ 表示未受汞污染; $0.5 \leq P_i \leq 1.0$ 表示受到汞污染; $P_i > 1.0$ 表明已受到汞污染。养殖鱼、贝类产品质量按现行的国家水产品甲基汞限量标准 ($\leq 0.5 \text{ mg/kg}$) 进行符合性评价^[20-22]。

汞或甲基汞暴露健康风险评价标准参照 JECFA 推荐的汞临时性周可承受摄入量 PTWI 值 5 $\mu\text{g/kg}$ (体质量), 甲基汞 1.6 $\mu\text{g/kg}$ (体质量); 美国 EPA 甲基汞参考剂量 RfD 值 0.1 $\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{d})$; 由于受到鱼、贝类甲基汞测定方法的限制和汞在贝、类体内多以甲基汞形式存在的事实, 参照 Agusa T 等的方法^[23], 以总汞含量作为甲基汞含量估算的依据, 根据 2000 年中国总膳食研究成果, 南方一区 (江西省、上海市、福建省) 12 类膳食汞的摄入量调查结果, 水产类膳食 53.7 $\text{g}/(\text{人}\cdot\text{d})$, 水产类外的膳食汞摄入量为 4.96 $\mu\text{g}/(\text{人}\cdot\text{d})$, 成年男子体质量定为 63.0 kg ^[24]。考虑沿海居民水产品消费量应高于平均水平, 本研究水产类膳食分别按 100 g (贝肉)/ $(\text{人}\cdot\text{d})$ 和 100 g (鱼肉)/ $(\text{人}\cdot\text{d})$ 两种方法进行估算。

根据三都湾环境汞污染现状、鱼、贝类产品汞

含量水平和食用鱼、贝类汞摄入量对沿海居民食用鱼、贝类的人体暴露健康风险进行评价。

1.4 数据统计方法

采用 t 分布估算鱼、贝类汞含量均值置信区间 ($\alpha=0.05$, $P=95\%$), 采用一元线性回归进行养殖鱼类总汞含量与鱼类体质量的相关显著性分析。数据应用 Excel 软件处理。

2 结果与分析

2.1 海水、沉积物总汞水平和养殖生物总汞含量

表 2 显示, 本次三都湾内 6 个站位表层与底层海水总汞水平在 0.015~0.046 $\mu\text{g/L}$, 为 $(0.027 \pm 0.009) \mu\text{g/L}$; 湾口底层和七星沙湾网箱养殖区 (4 号) 站位含量稍高, 为 0.046 $\mu\text{g/L}$; 其余各站分布较均匀, 在 0.015~0.032 $\mu\text{g/L}$ 之间。三都湾沉积物总汞水平在 0.055~0.113 mg/kg 之间, 为 $(0.074 \pm 0.013) \text{mg/kg}$ 。高值区在蕉城区渔潭附近的鱼类网箱养殖区 6 号站位, 沉积物总汞含量 0.113 mg/kg , 次高值区在三都樟湾缢蛭养殖区 13 号站位, 沉积物总汞含量 0.105 mg/kg , 低值区在 3 个僧帽牡蛎养殖区 (3、7、12) 站位, 沉积物总汞含量在 0.055~0.057 mg/kg 之间, 其他站位沉积物总汞含量范围在 0.062~0.082 mg/kg 之间。

表 2 福建三都湾海水、沉积物和养殖生物总汞水平

Tab. 2 Total mercury content in seawater, sediments and cultured creatures at Sandu Bay of Fujian province

样品 Sample	n	范围 Range	$\bar{x} \pm \text{SD} (\alpha=0.05)$
海水 / ($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$) Seawater	9	0.015~0.046	0.027 ± 0.009
沉积物 / ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, dry weight) Sediments	11	0.055~0.113	0.074 ± 0.013
鱼类 / ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, wet weight) Fish	31	0.012~0.084	0.032 ± 0.006
贝类 / ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, wet weight) Shellfish	4	0.004~0.011	0.008 ± 0.005

注: 鱼类沉淀组织为肌肉, 贝类为全部软组织。

Note: The analyzed tissue for fish was muscle and for shellfish was total soft tissue.

三都湾养殖贝类总汞含量范围在 0.004~0.011 mg/kg 之间, 为 $(0.008 \pm 0.005) \text{mg/kg}$ 。在所采集的样本中, 三都樟湾的缢蛭体内汞含量比其他僧帽牡蛎样品汞含量低。养殖鱼类总汞含量范围在 0.012~0.084 mg/kg 之间, 为 $(0.032 \pm 0.006) \text{mg/kg}$ 。鱼、贝类汞的含量与饵料生物中汞的含量水平密切相关, 三都湾鱼类养殖环境条件和饵料来源基本相同, 鱼类总汞含量与养殖区地理位置没有明显的关系而与鱼类体质量相关性显著, 4 月、8 月养殖鱼类总汞含量与鱼类体质量相关系数分别为 $r=0.703$ 8

和 $r=0.868$ 2。三都湾养殖鱼类总汞含量与鱼类体质量呈显著的正相关可能与鱼类的摄食量和食物的利用率有关。

三都湾沉积物、养殖贝类和鱼类相对于海水的总汞累积系数为 2 703、296 和 1 185。

2.2 海水、沉积物、贝类汞污染指数和养殖鱼、贝类产品质量分析

根据本次调查结果分别计算各介质汞污染指数列于表 3。

表 3 三都湾海水、沉积物和贝类汞污染指数
Tab. 3 Hg contamination index in seawater, sediments and shellfish at Sandu Bay

样本 Sample	质量标准 Quality standard	$P_i < 0.5$		$0.5 < P_i < 1$	
		P_i	%	P_i	%
海水 Seawater	0.2 µg/L	0.08~0.23	100	0	0
沉积物 Sediments	0.20 mg/kg	0.28~0.41	81.8	0.52~0.56	18.2
贝类 Shellfish	0.05 mg/kg	0.08~0.22	100	0	0

结果表明,三都湾海水与贝类生物尚未受到汞的污染;沉积物 81.8% 未受到汞的污染,18.2% 受到汞的污染。

2.3 食用鱼、贝类汞和甲基汞摄入量估算

按 100 g (贝肉)/(人·d) 和 100 g (鱼肉)/(人·d) 两种方法,鱼、贝类汞含量采用各自平均值置信区间上限值 (0.038 mg/kg 和 0.013 mg/kg) 代入,三都湾沿海居民食用养殖鱼、贝类汞摄入量估算值见表 4。

由表 4 可见,若水产类膳食以贝类计算,食用贝类的汞或甲基汞摄入量为 1.3 µg/(人·d),食用贝类的汞或甲基汞摄入量占 JECFA 相应 ADI 值的 2.9%~9.0%,占美国 EPA 甲基汞参考剂量的

20.6%,居民膳食汞总摄入量占 JECFA 相应 ADI 值的 13.9%;若水产类膳食以鱼类计算,食用鱼类的汞或甲基汞摄入量为 3.8 µg/(人·d),食用鱼类的汞或甲基汞占 JECFA 相应 ADI 值的 8.4%~26.4%,占美国 EPA 甲基汞参考剂量的 60.3%,居民膳食汞总摄入量占 JECFA 相应 ADI 值的 29.7%。从以上分析可见,三都湾沿海居民食用养殖鱼、贝类水产品的汞摄入量低于 JECFA 推荐的 PTWI 值和美国 EPA 设定的甲基汞参考剂量 RfD 值。鱼、贝类膳食汞摄入量均低于 2000 年中国总膳食研究-南方一区水产类膳食汞摄入量水平。

表 4 三都湾沿海城乡居民食用鱼贝类汞摄入量估算
Tab. 4 Estimated mercury intake by coastal residents at Sandu Bay consuming fish and shellfish µg/(人·d)

项目 Item	ADI ^①	贝类 by Shellfish ^⑤			鱼类 by Fish ^⑦		
		摄入量 Intake	占 ADI(%)	膳食摄入 Dietary intake ^⑥ % of ADI	摄入量 Intake	占 ADI(%)	膳食摄入 Dietary intake ^⑧ % of ADI
汞 Mercury	45 ^②	1.3	2.9	13.9	3.8	8.4	29.7
甲基汞 Methylmercury	14.4 ^③	1.3	9.0	—	3.8	26.4	—
甲基汞 Methylmercury	6.3 ^④	1.3	20.6	—	3.8	60.3	—

注: ① ADI 值, µg/(ind·d); ② JECFA 总汞 PTWI×63 kg÷7; ③ JECFA 甲基汞 PTWI 值 ×63 kg÷7; ④ 美国 EPA RfD 值 ×63 kg; ⑤ 100 g 贝类体汞含量 (按 0.013 mg/kg 计算); ⑥ 100 g 贝类体汞含量+其他膳食摄入汞量 (4.96 µg); ⑦ 100 g 鱼类汞含量 (按 0.038 mg/kg 计算); ⑧ 100 g 鱼类汞含量+其他膳食摄入汞量 (4.96 µg)。
Note: ① ADI Value, µg/(ind·d); ② JECFA Total mercury PTWI×63 kg ÷7; ③ JECFA methylmercury PTWI×63 kg ÷7; ④ US EPA RfD Value×63 kg; ⑤ Total Mercury content in 100 g shellfish (calculated on the basis of 0.013 mg/kg); ⑥ Mercury content in 100 g shellfish + other dietary mercury intakes (4.96 µg); ⑦ Mercury content in 100 g fish (calculated on the basis of 0.038 mg/kg); ⑧ Mercury content in 100 g fish + other dietary mercury intaken (4.96 µg).

3 讨论

3.1 三都湾海水、沉积物和鱼、贝类总汞含量与国内相关调查资料的比较

本次调查三都湾海水总汞平均水平比 1985 年福建沿岸水域海水总汞水平 (平均值 0.008 2 µg/L) 和 1998 年¹⁾ 三都湾水域海水总汞水平 (平均值

0.016 µg/L) 高,但比 1985 年福建沿岸潮间带海水总汞水平 (平均值 0.050 µg/L) 低。从总体含量水平分析,可以认为,近 20 年来三都湾海水总汞水平变化不大。三都湾表层沉积物与 20 世纪 80 年代以来 3 次调查结果 (表 5) 比较可以看出,本次调查结果与 1985 年三都湾潮间带沉积物总汞含量调

1) 福建省海洋污染基线调查报告编委会,第二次全国海洋污染基线调查福建省海洋污染基线调查报告,2000,114-116.

查结果相一致,与其他调查结果相接近。三都湾海水和表层沉积物中总汞的稳定分布特征与该湾历来以渔业生产为主,沿岸开发程度低,没有明显的汞污染源,海洋环境中汞的迁入和输出处于自然的相对平衡状态有关。

表 5 福建沿岸和三都湾沉积物总汞含量历史调查资料

Tab. 5 Total mercury content of previous survey results in sediments From Fujian coast and Sandu Bay mg/kg

调查年度 Year	地 点 Location	范围 Range	平均值 Average
1985 ^[17]	三都湾潮间带 Sandu Bay Inter-tidal	0.061~0.099	0.077
	福建沿岸 Fujian coast	0.004~0.087	0.046
1991 ^[18]	三都湾潮间带 Sandu Bay Inter-tidal	0.034~0.102	0.056
	三都湾浅海水域 Sandu Bay Shallow waters	0.018~0.064	0.048
1998 ¹⁾	三都湾 Sandu Bay	0.020~0.060	0.050

本研究与国内相关的调查数据(表 6)比较可以发现,养殖贝类体内总汞含量低于闽东海域和三都湾以往历次调查的结果,也比大亚湾调查结果^[29]低。养殖鱼类总汞平均含量略高于湾内 1991 年调查结果,但低于湾内 1998 年调查结果和大亚湾调查结果。

表 6 中国部分海域海水鱼、贝类总汞含量资料

Tab. 6 Data of total mercury content in marine fish and shellfish in some sea areas of China

海域 Sea Area	样品 Sample	范围/(mg·kg ⁻¹ , wet eight) Range	均值/(mg·kg ⁻¹ , wet weight) Average	调查年度 Year
闽东海域 Mindong Coast ^[17]	缢蛏 Razor clam	0.005~0.026	0.014	1978~1979
		0.035~0.076	0.055	1985
	牡蛎 Oyster	0.015~0.033	0.025	1978~1979
		0.033~0.046	0.038	1985
三都湾 Sandu Bay ^[18]	缢蛏 Razor clam	0.033~0.046	0.040	1991
	牡蛎 Oyster	—	0.036	
	鱼类 Fish	0.005~0.058	0.027	
		0.015~0.036	0.027	
三都湾 3 Sandu Bay	缢蛏 Razor clam	0.009~0.008	0.029	1998
	牡蛎 Oyster	0.015~0.080	0.046	
	鱼类 Fish	0.038~0.110	0.071	
大亚湾 Daya Bay ^[29]	软体动物 Mollusca	0.026~0.120	0.051	1996~1997
	鱼类 Fish	0.012~0.084	0.032±0.006	
本研究 In this study	鱼类 Fish	0.004~0.011	0.008±0.005	2004
	贝类 Shellfish			

注: 鱼类沉淀组织为肌肉,贝类为全部软组织。
Note: The analyzed tissue for fish was muscle and for shellfish was total soft tissue.

通过调查数据分析可以看出,三都湾鱼贝类体总汞平均含量近 30 年来一直波动于鱼类汞含量的下限(0.05 mg/kg)区间,与海水和沉积物汞的含量水平和变化趋势基本相对应。大亚湾鱼贝类体总汞含量高于三都湾的原因,与该湾海水、沉积物汞含量总体水平高于三都湾有关,该湾各季度月海水、沉积物汞平均含量范围分别为 0.036~0.114 μg/L 和 0.10~0.21 mg/kg。

1) 福建省海洋污染基线调查报告编委会,第二次全国海洋污染基线调查福建省海洋污染基线调查报告,2000,114~116.

3.2 三都湾养殖生物总汞含量与国外鱼贝类总汞含量的比较

将本次三都湾养殖生物汞含量调查结果与美国^[30]、日本^[31]最近公布的鱼、贝类汞含量进行比较,从表7可见,三都湾牡蛎汞平均含量与日本的太平洋牡蛎和美国的牡蛎较接近;但三都湾牡蛎汞含量的最大值(0.011 mg/kg)比日本、美国的牡蛎汞含量的最大值(0.250 mg/kg和0.130 mg/kg)低得多;三都湾的石首科鱼类大黄鱼、鲩的鱼汞平均含量(0.026 mg/kg和0.036 mg/kg)略低于日本的大黄鱼(0.050 mg/kg);三都湾大黄鱼、鲩的汞平均含量和最大含量(0.084 mg/kg和0.053 mg/kg)均比美国的大西洋石首鱼(0.072 mg/kg和0.148 mg/kg)低;三都湾的鲈汞平均含量(0.056 mg/kg)低于日本鲈(0.100 mg/kg)和美国的红鲈(0.128 mg/kg)。后二者含汞量最大值(0.510 mg/kg和0.625 mg/kg)分别是三都湾养殖鲈鱼(0.075 mg/kg)的6.8倍和8.3倍。

近年来,国内开始关注鱼、贝类甲基汞含量问题,2005年以来相继修订的水产品卫生标准和质量标准均以甲基汞含量代替了原有的总汞含量,并采用欧盟和世界卫生组织有关鱼、贝类甲基汞含量的限值,即鱼(不包括食肉鱼类)及其他水产品汞限量指标(甲基汞≤0.5 mg/kg)。根据有关报道,鱼类等海产品中70%~90%的汞以甲基汞的形式存在^[25]。国内有关鱼类甲基汞的研究结果(表8)表明,海洋软体动物体内甲基汞含量占总汞含量的42.1%~61.6%,鱼类占66.2%~91.5%;水产品(含海、淡水鱼、贝类)占20%~94.99%;受到汞污染的松花江淡水鱼类占82.0%~88.9%。由于三都湾养殖生物体内汞含量较低,受到分析测试技术手段的限制没有测定甲基汞含量,但从本次调查的鱼贝类总汞含量数据分析,即使用总汞含量作为甲基汞含量,三都湾养殖的鱼、贝类甲基汞含量也普遍低于国家现行的产品限量要求1~2个数量级,符合产品卫生标准和无公害产品质量要求。

表7 三都湾养殖生物总汞含量与国外鱼贝类总汞含量的比较
Tab. 7 Comparison between cultured creatures at Sandu Bay and foreign fish and shellfish in terms of total mercury content

国家或地区 Country or Region	n	种类 Species	汞含量范围 Range of mercury content	平均值 Average
美国 US ^[30]	38	牡蛎 Oyster	< 0.01~0.250	0.013
	35	大西洋石首鱼 Croaker Atlantic	< 0.013~0.148	0.072
	59	红鲈 Sheepshead	0.020~0.625	0.128
	43	太平洋牡蛎 Pacific Oyster	0.000~0.130	0.010
日本 ^[31] Japan	143	日本鲈 Japanese Sea Bass Perch	0.000~0.510	0.100
	1	大黄鱼 Large Yellow Croaker	—	0.050
	3	牡蛎 Oyster	0.009~0.011	0.010
三都湾 Sandu Bay	1	蛭 Razor Clam	0.004	0.004
	16	大黄鱼 Large Yellow Croaker	0.012~0.084	0.026
	12	鲩 Slate Cod Croaker	0.017~0.053	0.036
	3	鲈 Weever	0.032~0.075	0.056

注：鱼类沉淀组织为肌肉，贝类为全部软组织。
Note: The analyzed tissue for fish was muscle and for shellfish was total soft tissue.

表8 鱼和贝类甲基汞占总汞含量比例
Tab. 8 Methylmercury proportion of the total mercury content in fish and shellfish

采样地点 Sampling location	样品 Sample	范围/% Range	均值/% Average	调查年度 Investigated year
福建沿岸 Fujian coast	鱼类 Fish	—	91.5	1985 ^[21]
	软体动物 Mollusks	—	42.1	
广东省、海南岛 Guangdong Province and Hainan Island	鱼类 Fish	46.6~67.0	66.2	1987 ^[26]
	软体动物 Mollusks	45.8~65.4	61.6	
全国 15 省市 15 Provinces in China	水产品 Aquatic products	20~94.99	56.1	1986 ^[27]
松花江 Songhua River	淡水鱼 Freshwater fish	82.0~88.9		2003 ^[28]

注：鱼类沉淀组织为肌肉，贝类为全部软组织。
Note: The analyzed tissue for fish was muscle and for shellfish was total soft tissue.

3.3 甲基汞暴露健康风险评价

本项研究表明:三都湾海水、沉积物汞含量符合养殖水域环境质量要求,养殖鱼、贝类汞含量较低,也符合有关国际组织的鱼、贝类产品甲基汞限量要求。以 100 g/(人·d)的水产类摄食量估算,食用鱼、贝类汞摄入量分别占 JECFA 推荐的汞临时性周可承受摄入量 PTWI 值的 8.4%和 2.9%;用总汞数据估算甲基汞摄入量分别占 PTWI 值的 26.4%和 9.0%。采用美国 EPA 设定的甲基汞 RfD 值估算,食用鱼、贝类甲基汞摄入量分别占 60.3%和 20.6%。综合研究结果表明,三都湾沿海居民食用养殖鱼、贝类水产品引起甲基汞暴露的健康风险很小。

鱼类作为商品通过经济贸易已遍布全球各地,人们消费的鱼类及其他水产品不仅来自于当地而且可能来源于世界遥远的其他产地,由于甲基汞在水生食物网中的积累和生物放大作用,处于食物链顶端的大型食肉型鱼类体内的甲基汞含量可达到 1.0 mg/kg 以上,如大王鲭、鲈鱼、旗鱼、瓦鱼、大型金枪鱼等。Tetsuro 等按照目前柬埔寨人的鱼摄入量 (32.6 g/d) 计算,分别有 9%和 3%的鱼类样品汞水平超过 USEPA 和 JECFA 制定的参考值。由于日本人对海产品的高消费,根据对 10 个地区的调查结果显示,估计有 25%的育龄妇女甲基汞暴露超过 PTWI 水平^[32]。因此,在充分享受吃鱼给人们带来的益处时,尽量减少和消除鱼类甲基汞对公众健康可能造成的危害仍是世界各国需要关注的问题。

致谢:钟硕良教授、阮金山高级工程师、蔡清海研究员、钱小明副研究员、吴立峰高级工程师等协助采样工作,厦门大学袁东星教授在英文摘要翻译方面给予的帮助,在此一并表示感谢。

参考文献:

- [1] GB3097-1997,海水水质标准[S].
- [2] GB18668-2002,海洋沉积物质量[S].
- [3] GB18421-2001,海洋生物质量[S].
- [4] 赫茨英格.环境化学手册:第5分册[M].北京:中国环境科学出版社,1987:4-9.
- [5] 蔡文洁,江研因.甲基汞暴露健康风险评价的研究进展[J].环境与健康杂志,2008,25(1):79-81.
- [6] Ullrich S M, Tanton T W, Abdrashitova S A. Mercury in the aquatic environment: A review of factors affecting methylation[J]. Critical Reviews in Environmental Science and

Technology,2001,31(3):241-293.

- [7] Rene Cnuel, Sylvie Boucher de Grosbois, Laura Atikese, et al. New evidence on variations of human body burden of methylmercury from fish consumption[J]. Environ Health Perspect,2006,114(2):302-306.
- [8] Mergler D, Anderson H A, Hing M C, et al. Methylmercury exposure and health effects in humans: a worldwide concern[J]. AMBIO,2007,36:3-11.
- [9] Hall BD, Bodaly RA, Fudge RJP, et al. Food as the dominant pathway of methylmercury uptake by fish[J]. Water Air Soil Pollut,1997,100:13-24.
- [10] 张延.日本水俣病和水俣湾的环境恢复与保护日本水俣病和水俣湾的环境恢复与保护[J].调查研究,2006(5):50-52.
- [11] Salonen J T, Seppanen K, Lakka T A, et al. Mercury accumulation and accelerated progression of carotid atherosclerosis: a population-based prospective 4-year follow-up study in men in eastern Finland[J]. Atherosclerosis,2000,138:265-273.
- [12] Anton M S, Michael W M, Mark B S, et al. Effects of environmental methylmercury on the health of wild birds, mammals and fish[J]. AMBIO,2007,36:12-18.
- [13] WHO.Guideline levels for methylmercury in fish[S]. CAC/GL7-1991.Geneva:1991:1.
- [14] 欧盟委员会(EC)466/2001 规章.
- [15] JECFA, Summary and conclusions of the 61ST Meeting of the Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives[R]. JECFA/61/SC, Rome, Italy. 2003.
- [16] US EPA, Mercury study report to congress, Office of Air Quality Planning and Standards and Office of Research and Development[R].Washington, DC. 1997.
- [17] 福建省海岸带和海涂资源综合调查领导小组办公室.福建省海岸带和海涂资源综合调查报告[M].北京:海洋出版社,1990:274.
- [18] 福建省海岛资源综合调查编委会,福建省海岛资源综合调查研究报告[M].北京:海洋出版社,1996:315-317.
- [19] GB 17378-1998,海洋监测规范[S].
- [20] GB2762-2005,食品中污染物限量[S].
- [21] GB2733-2005,鲜、冻动物性水产品卫生标准[S].
- [22] NY5073-2006,无公害食品 水产品中有毒有害物质限量[S].
- [23] Agusa T, Kunito T, Iwata H, et al. Mercury contamination in human hair and fish from Cambodia: levels, specific accumulation and risk assessment[J]. Environ Poll,2005,134:79-86.
- [24] 李筱薇,高俊全,陈君石.2000年中国总膳食研究—膳食汞摄入量[J].卫生研究,2006,35(3):323-325.
- [25] Center for Disease Control and Prevention. Third national report on human exposure to environmental chemicals [R]. National Center for Environmental Health, Atlanta,2006:45-52.

- [26] 贾晓平, 林钦, 李纯厚, 等. 南海渔业生态环境与生物资源的污染效应研究 [M]. 北京: 海洋出版社, 2004: 50.
- [27] 周树南, 蔡云清. 15 省市主要水产品中甲基汞污染情况调查及其制订卫生标准初探 [J]. 中国公共卫生, 1986, 5 (2): 7-8.
- [28] 冯丹, 马俊杰, 白羽军, 等. 松花江哈尔滨江段鱼类汞污染现状研究 [J]. 黑龙江环境通报, 2004, 28 (2): 53-54.
- [29] 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危害 [J]. 热带海洋学报, 2005, 24 (5): 69-76.
- [30] US FDA, US EPA. Mercury levels in commercial fish and shellfish (R/OL). <http://www.cfsan.fda.gov/lfrf/sea-mehg.html>. 2006.
- [31] Joint Sub-Committees on Animal Origin Foods and Toxicology. Advice for pregnant women on fish consumption concerning mercury contamination [Z]. 3 June 2003. <http://www.mhlw.go.jp/English/wp/other/councils/mercury/index.html>.
- [32] Yasutake A, Matsumoto M, Yamaguchi M, et al. Current hair mercury levels in Japanese for estimation of methylmercury exposure [J]. J Health Sci, 2004, 50: 120-125.

Total mercury in the marine culture products and relative environmental samples from Sandu Bay of Fujian Province and its health risk assessment

LI Xiu-zhu

(Fisheries Research Institute of Fujian, Xiamer 361012, China)

Abstract: Due to the facts of bio-methylation and bio-magnification/accumulation of mercury, mercury in cultured creatures has been considered to be the main source of methylmercury in human being. Sandu Bay, located at the northeastern coast of Fujian Province, has an area of 15 thousand hm² for various marine cultures and provides 225 000 t products each year. To assess the health risk of methylmercury, 9 seawater samples, 11 surface sediment samples, 31 cultured fish samples and 4 cultured shellfish samples were collected from Sandu Bay in 2004. The analysis of total mercury in the samples was carried out with atomic fluorescence spectrophotometric method, and the mercury pollution level at Sandu Bay and the health risk were assessed. Total mercury contents in seawater, sediment, cultured shellfish and fish samples ranged from 0.015 µg/L to 0.046 µg/L, 0.055 mg/kg to 0.113 mg/kg, 0.004 mg/kg to 0.011 mg/kg, and 0.012 mg/kg to 0.084 mg/kg, respectively; and the values were (0.027 ± 0.009) µg/L, (0.074 ± 0.013) mg/kg, (0.008 ± 0.005) mg/kg and (0.032 ± 0.006) mg/kg, respectively. These results were comparable with those of other research on Fujian coastal areas in 20 years. The averaged total mercury concentration in cultured fish and shellfish has been about 0.05 mg/kg for 30 years, corresponding to that of in seawater and sediments. Compared with the data of total mercury concentration in fish and shellfish released recently by USA and Japan, the concentration in oyster of Sandu Bay was closed to that in Pacific oyster of Japan and in oyster of USA. However, the highest concentration (0.011 mg/kg) found in oyster of Sandu Bay was much lower than that found in Japan (0.250 mg/kg) and USA (0.130 mg/kg). The averaged and the highest concentrations in Large Yellow Croaker (*Pseudosciaena crocea*) (0.026 mg/kg and 0.084 mg/kg, respectively) and Slate Cod Croaker (*Nibea miichthioides*) (0.036 mg/kg and 0.053 mg/kg, respectively) of Sandu Bay, were much lower than those found in Croaker Atlantic (0.072 mg/kg and 0.148 mg/kg, respectively) of USA. The averaged concentration in Weever (*Lateolabrus japonicus*) (0.056 mg/kg) of Sandu Bay was lower than that in Japanese Sea Bass Perch (0.100 mg/kg) and US Sheepshead (0.128 mg/kg). The highest concentrations of Japanese Sea Bass Perch and US Sheepshead, 0.510 mg/kg and 0.625 mg/kg, respectively, were 6 to 8 times higher than that (0.075 mg/kg) in Sandu Bay. Total mercury in the seawater, sediment and shellfish samples of Sandu Bay met the national environmental quality criteria. Mercury in the cultured fish and shellfish was below the limits of aquatic products regulated by China, WHO and EU. Taking 100 g/(person·day) as the possible up-take amount of total mercury from fish and shellfish of Sandu Bay for estimation, it is only 8.4% and 2.9% of what suggested by JECFA, respectively. The possible up-take amount of methylmercury from fish and shellfish of Sandu Bay would be only 26.4% and 9.0% of PTWI, and 60.3% and 20.6% of RfD value by US EPA, respectively. The health risk arising from the exposure to mercury due to the consumption of aquatic products of Sandu Bay was small. [Journal of Fishery Sciences of China, 2008, 15 (6): 961-969]

Key words: mercury; methylmercury; cultured species; Sandu Bay; Fujian Province; health risk assessment