

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2015.0658

马鑫雨, 杨浩, 姚逊, 等. 2016. 典型养殖型湖泊中的重金属含量及健康风险特征——以宿鸭湖为例[J]. 环境科学学报, 36(6): 2281-2289

Ma X Y, Yang H, Yao X, et al. 2016. Heavy metal concentration of artificial lake for aquaculture and its health effect on surrounding residents: A case study in Suya Lake[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 36(6): 2281-2289

## 典型养殖型湖泊中的重金属含量及健康风险特征 ——以宿鸭湖为例

马鑫雨<sup>1,2</sup>, 杨浩<sup>1,\*</sup>, 姚逊<sup>2</sup>, 赵其国<sup>1,3</sup>, 谢标<sup>1</sup>, 郑俊<sup>2</sup>, 陈云增<sup>4</sup>

1. 南京师范大学地理科学学院, 南京 210023

2. 湖州市环境监测中心站, 湖州 313000

3. 中国科学院南京土壤研究所, 南京 210008

4. 河南大学环境与规划学院, 开封 475001

收稿日期: 2015-07-17

修回日期: 2015-09-15

录用日期: 2015-09-17

**摘要:** 为评估典型水产养殖型湖泊中的重金属含量水平及其人体健康风险特征, 系统采集并测定了宿鸭湖湖水、周边地下水、沉积物及鱼体中的重金属含量. 在此基础上计算了不同重金属在不同介质间(湖水-鱼体、湖水-沉积物及沉积物-鱼体)的转移因子, 并通过健康风险指数计算定量分析了宿鸭湖水生态系统中重金属对人体的健康影响, 以及不同暴露途径的风险贡献率. 结果表明: Zn、Ba 和 Sr 在不同介质体内含量均较高, 而 Sn 和 Cd 的含量均比较低. Cr 和 Zn 在鱼体中的均值含量超过 WHO 鱼类产品中重金属的含量限值, 具有潜在毒性; 湖水和地下水中的所有重金属浓度均低于饮用水标准中的相关限值; 部分沉积物样品中 Cr、Ni、Cu、Zn、Cd 和 Pb 含量超出环境保护部《土壤环境质量标准》(GB15618—2008)自然背景值, 但低于美国华盛顿州沉积物化学标准(WAC 172-204-320)中的含量限值, 已构成轻微污染. 不同介质间的转化因子分析表明, 鱼体对湖水中的 Zn、Sr、Ba、Cu、Cr、Ni、Co、Sn 和 Cd 均存在富集作用; 但除 Zn 以外, 鱼体对沉积物中的其他重金属无明显的富集作用; 宿鸭湖水生态系统中的重金属 Cr 对人体的 HRI 值为 1.6, 其健康危害效应不可忽视; 食用鱼类是导致 Cr 人体健康危害的主要途径, 贡献率高达 94%; 最后, 与非养殖型湖泊相比, 宿鸭湖水库中鱼体内 Pb 和 Cr 的含量明显偏高, 且重金属从湖水到沉积物的转移因子明显偏高, 而从湖水到鱼的生物浓缩因子相对较低.

**关键词:** 人工湖泊; 重金属; 健康风险; 转移因子

文章编号: 0253-2468(2016)06-2281-09

中图分类号: X820.4

文献标识码: A

## Heavy metal concentration of artificial lake for aquaculture and its health effect on surrounding residents: A case study in Suya Lake

MA Xinyu<sup>1,2</sup>, YANG Hao<sup>1,\*</sup>, YAO Xun<sup>2</sup>, ZHAO Qiguo<sup>1,3</sup>, XIE Biao<sup>1</sup>, ZHENG Jun<sup>2</sup>, CHEN Yunzeng<sup>4</sup>

1. College of Geographical Science, Nanjing Normal University, Nanjing 210023

2. Huzhou Environment Monitoring Center, Huzhou 313000

3. Institute of Soil Science, Chinese Academy of Science, Nanjing 210008

4. College of Environment and Planning, Henan University, Kaifeng 475001

Received 17 July 2015;

received in revised form 15 September 2015;

accepted 17 September 2015

**Abstract:** To estimate the metal concentration in typical artificial lake for aquaculture, as well as their influence on human health, the concentration of metals in surface and sub-surface water, sediment and fishes were examined. Based on this, the transfer factor (TF) of different metals in fish from water and sediment were calculated to analyze the migration and transformation role of metal among different mediums, and the Health Risk Index (HRI) were calculated to estimate the potentially detrimental effect of metals in Suya Lake ecosystem on human health. It can be identified that: the Zn, Ba and Sr are elements that occur in all four media at the highest concentration, while Sn and Cd are elements that at the lowest concentration; the concentrations of Cr and Zn in the edible part of fish exceed limit values adopted by FAO and WHO for fish products, therefore being potentially toxic for eating; the

**基金项目:** 国家自然科学基金(No.41271189, 41273103, 51309093); 湖州市科技项目(No. 2015GY30)

**Supported by** the National Natural Science Foundation of China(No.41271189, 41273103, 51309093) and the Huzhou Science and Technology Project (No. 2015GY30)

**作者简介:** 马鑫雨(1984—), 女, 工程师, E-mail: maxy\_nsd@163.com; \* 通讯作者(责任作者), E-mail: yanghao@nynu.edu.cn

**Biography:** MA Xinyu(1984—), female, engineer, E-mail: maxy\_nsd@163.com; \* **Corresponding author**, E-mail: yanghao@nynu.edu.cn

concentrations of all elements in water body are lower than the limit value regulated in drinking water standards, therefore being innocuous for drinking; the concentrations of Cr, Ni, Cu, Zn, Cd and Pb in part of sediment samples are larger than the background value adopted by Environmental Quality Standard for Soils (GB15618—2008) but smaller than that adopted by Sediment Chemical Criteria (WAC 172-204-320), which means that sediment, though being polluted, are not innocuous for touching. TF analysis indicates that fish can accumulate the heavy metal from water, but cannot accumulate the heavy metal from sediment with the exception of Zn; the HRI of Cr is 1.6 with the main exposure route from fish digestion, indicating that fish is not acceptable for eating; the concentration of Zn and Cu, as well as the TF value (lake water to sediment) are significantly high, while the Bio-accumulation Factor are relatively low.

**Keywords:** artificial lake; heavy metal; health risk; transfer factor

## 1 引言(Introduction)

人类利用重金属的历史已久,然而直到20世纪70年代重金属对生态环境及人体健康的危害效应才被逐渐重视,并被大量研究(Alkan *et al.*, 2012; Mitra *et al.*, 2012;段小丽等, 2011;Liu *et al.*, 2011;孙超等,2009;徐亚等,2014).环境介质中重金属的富集一方面是由于天然条件下富含重金属的岩石与空气、水、二氧化碳等物质长期作用导致重金属溶出并进入水体和土壤(Chai *et al.*, 2015; Luo *et al.*, 2015; Alloway *et al.*, 1995; Blaser *et al.*, 2000);另一方面,近现代以来工农业迅速发展,人类活动(如采矿、种植、养殖等)有关的重金属排放量日益增加,进入地表地下水体就会对水环境系统造成影响(Hovmand *et al.*, 2013; Starr *et al.*, 2003; Solgi *et al.*, 2003).重金属污染物进入水体后,水生生态系统中的植物、鱼类、底栖动物等都可能摄入这些重金属元素.尽管某些金属元素,如铁、铜、锌和铬等是人体和其他动植物生长所必须的,但其浓度一旦过低或过高,对生物体的健康影响将不逊于摄入镉、铅、汞等非必需元素的危害(Petra *et al.*, 2013).水环境质量对水体中的动植物有着重要影响,而水体中动植物的存在也会直接影响水体中重金属的浓度、形态及其生物可受性(姜林等,2014).因此,研究水环境中重金属污染和毒性特征及人体健康效应,需要同时开展水环境质量及动植物体中重金属富集情况的研究.

最初研究者关注较多的是重金属对水生生物体的潜在危害(即生态风险)及其在食物链中的富集效应(Handy *et al.*, 1994;Awadallah *et al.*, 1985; Chan *et al.*, 1990).近年来,研究者开始更多关注食用富集重金属的鱼类引起的人体健康危害(即健康风险),如王德庆(2013)研究了太湖鱼体中PAHs和OCPs的暴露水平、分布特征和人体健康风险;郭春晶(2013)研究了鄱阳湖区水环境及经济鱼类重金属污染特性;胡余明等(2013)分析了洞庭湖鱼组

织中持久性有机污染物含量分布.然而多数研究都是针对天然湖泊,或是以防洪发电为主的人工水库,对于像宿鸭湖这样以水产养殖为主的人工湖泊,有关其水体、沉积物及鱼体中的重金属污染及人体健康风险特征却缺乏深入研究.

宿鸭湖,又称宿鸭湖水库,是目前中国甚至亚洲面积最大的人工湖.宿鸭湖水库以防洪为主,同时大力发展人工养殖业,鱼类是该水库最主要的水产品.近年来由于农药化肥的大量使用、周边工业企业“三废”的随意排放,导致宿鸭湖重金属污染严重,水污染进而又对鱼产品质量产生影响(张鹏岩等, 2013).研究表明,肝、肾等内脏器官对重金属的富集能力远高于肌肉、鱼鳃等器官(夏泽慧等,2012;霍礼辉等,2012),但考虑到消费者在烹饪前会预先去除上述鱼体组织,因此,本研究主要考虑鱼体可食用部分的重金属毒性.鱼肉蛋白质丰富,是世界上许多国家和地区,尤其是鱼养殖业发达区域动物蛋白摄入的主要来源(赵霖等,2009),因而一些学者认为鱼体中的重金属含量可以作为衡量地表水污染程度及其风险水平的一个重要指标(Rased *et al.*, 2001).本研究选择宿鸭湖中主要食用鱼(黄颡鱼和鲫鱼)为重点研究对象,对其可食用部分中的12种重金属污染物进行测定.同时,测定并分析了作为当地居民主要饮用水源且接受宿鸭湖湖水补给的地下水中的重金属污浓度.在此基础上分析重金属在不同介质间的转化关系,评价库区居民食用水库鱼和饮用受污染地下水的健康风险,并比较分析非养殖类水体中的重金属污染特征和健康风险特征.

## 2 研究区概况(Study area)

宿鸭湖位于河南省汝南县境西北部,水库大堤南起野猪岗,北至玉皇庙,长35.29 km,东临桂庄,西到别桥,东西最宽处近15 km.库区占地约35万亩,库容8.2亿m<sup>3</sup>.宿鸭湖流域是典型的平原农业区,由于农药化肥的大量使用、周边工业企业“三废”的随意排放,以及库区水产养殖投放的饵料和渔药,造

成宿鸭湖中重金属严重超标(张鹏岩等,2013).水体中的重金属通过食物链富集到鱼体中,人一旦食用就可能产生潜在的健康危害.随着我国水环境治理工作的开展,迫切需要对库区水环境开展重金属污染调查和人体健康危害研究,为其后续水污染治理和修复提供决策支持和指导.

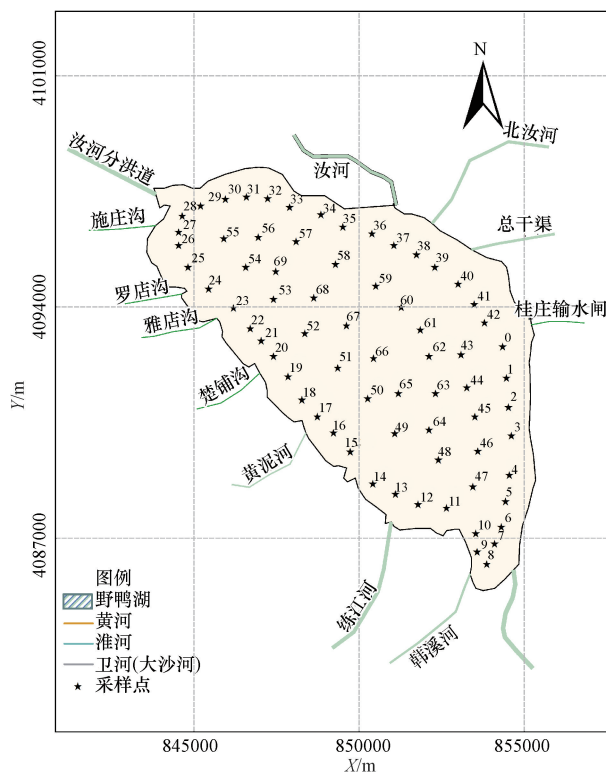


图1 研究区概况图(坐标系统采用北京 54 投影坐标系统)

Fig.1 Overview of study area

### 3 材料和方法(Materials and methods)

#### 3.1 样本采集和预处理

为采集有代表性的鱼样,在当地渔民的帮助下,于2011年10月(秋收季节)傍晚时分(典型捕鱼时分)开始捕鱼,在等距布置的4个剖面上每个剖面捕获3~4尾鱼,共计捕获13尾鱼.对其中体长过短(小于10 cm)的样本进行筛选后,剩下4尾黄颡鱼和4尾鲤鱼,体长均在15~18 cm之间.根据现场调查采访,当地渔民捕获及居民消费的鱼尺寸也均在15~18 cm左右.鱼样采集后洗净装入密封袋冷冻保存;用不锈钢手术剪对鱼体进行解剖,去鳞去鳃去内脏,并剔除鱼刺后将肌肉部分在80℃鼓风干燥箱中干燥12 h,用玛瑙研钵磨碎并混合均匀.

对于地下水采样,分别在水库下游布置3口污染监测井,两侧各2口扩散监测井,共计7个地下水

采样点位.利用0.45 μm 滤膜对采集后的地下水样进行现场过滤,并装入预先洗净的采样瓶中;用优级纯浓 HNO<sub>3</sub> 对水样进行酸化至 pH=2,于4℃下低温保存以备实验分析.

湖水和沉积物的采样布点采用网格法和重点区域相结合的方式,共布设65个采样点,采集65个水样和沉积物样品.与地下水样品采集和预处理方式类似,通过现场过滤-装瓶-酸化以后,低温保存以备实验分析.

沉积物样品与湖水样品同时采集,采样器为澳大利亚产重力取样器,样品采集后用塑料袋密封后送实验室低温(4℃)保存.在进行试验分析前,将沉积物样品通风阴干,拣去动植物残体和石块,并过10目的筛子.充分混匀后进一步研细并过230目的筛子以备试验分析.

#### 3.2 实验方法

3.2.1 样品消解 取约0.25~0.50 g 鱼肉粉加入10 mL 浓硝酸溶液,过夜后,在70~80℃的水浴中2~4 h后用超纯水定容,待测.参考国标 GB/T 17138—1997,将预处理后的沉积物样品用加热、酸溶法(HNO<sub>3</sub>-HF-HClO<sub>4</sub>) 在电热板上加热消解后,定容至100 mL 并经0.45 μm 滤膜过滤后冷藏,待测.

3.2.2 试验分析 对鱼肉、地下水、湖水和沉积物样品,分别测试其重金属(Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、Sr、Cd、Sn、Sb、Ba 和 Pb)含量.对地下水和湖水中的重金属,直接采用德国 Thermo Scientific 制造的电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)对预处理后样品进行测定,对鱼肉和沉积物中的重金属,采用 ICP-MS 测定其消解液中重金属浓度,并换算成样品重金属含量.

3.2.3 数据测定和检验 为检验分析结果的可靠性,选取地下水样和鱼样的20%及湖水和沉积物样品的15%进行平行试验,平行试验结果表明,相对标准偏差 RSD 均小于10%;同时对上述各待测样品进行加标回收率实验,结果表明,重金属回收率为100%±10%,满足分析方法规定的要求.

#### 3.3 转移因子和健康风险计算方法

3.3.1 转移因子 重金属转移因子(TF)用以表征湖泊生态系统中重金属在不同介质间的转移分配规律.当用以表征重金属在水和生物体之间的转移分配时,又称之为生物富集因子(BAF, Bioaccumulation Factor)或生物浓缩因子(Bioconcentration Factor).TF 值可根据式(1)计算得到.

当  $TF > 1$ , 表明鱼体肌肉组织对该金属具有富集作用;  $TF < 1$ , 则表明不具有富集效应 (Rased *et al.*, 2001; Matias *et al.*, 2015).

$$TF_i = \frac{C_{\text{fish-}i}}{C_{\text{ecosystem-}i}} \quad (1)$$

式中,  $TF_i$  为鱼肌肉对第  $i$  种重金属的转移因子;  $C_{\text{fish-}i}$  为鱼肌肉中第  $i$  种重金属含量 ( $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ );  $C_{\text{ecosystem-}i}$  为水环境介质中 (湖水或沉积物) 中第  $i$  种重金属含量 ( $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ).

3.3.2 人体健康风险计算 库区居民的鱼类消费以本地鱼为主, 因此, 宿鸭湖水库周边居民食用鱼过程中会同时摄入鱼体中的重金属, 并产生潜在健康风险; 另外, 地下水是库区的主要饮用水源, 且长期接受宿鸭湖补给情况下, 已经产生地下水重金属污染, 因此, 饮水也会导致重金属暴露. 综上, 人体通过食用鱼肉和饮用地下水的重金属暴露量可以采用下式计算 (李如忠, 2007):

$$CDI = ((C_{\text{GW}} \times CR \times P_{\text{LW}} + C_{\text{Fish}} \times DR_{\text{Fish}} \times P_{\text{LF}}) \times FE \times DE) / (BW \times AW) \quad (2)$$

式中,  $CDI$  为重金属污染物日均暴露量 ( $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ );  $C_{\text{GW}}$  为地下水中的污染物浓度 ( $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ );  $P_{\text{LW}}$  为饮用水中地下水所占比例;  $C_{\text{Fish}}$  为鱼肌肉中的污染物含量 ( $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ );  $P_{\text{LF}}$  为鱼类消费中本地鱼所占比例 (本文取 100%);  $DR_{\text{Fish}}$  为鱼肉日均摄入量 ( $\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$ );  $FE$  为暴露频率 ( $\text{d} \cdot \text{a}^{-1}$ );  $DE$  为暴露年数 ( $\text{a}$ );  $BW$  为暴露人群体重 ( $\text{kg}$ );  $AT$  为污染物的作用时间 ( $\text{d}$ , 对致癌物质取我国人均寿命对应的天数, 对非致癌物质取  $DE$  和  $FE$  的乘积).

健康风险指数  $HRI$  可以根据  $CDI$  和经口参考剂量 ( $RfD$ ) 值计算得到, 公式如下 (秦普丰, 2008):

$$HRI = CDI / RfD \quad (3)$$

当  $HRI$  值小于 1, 表明人群健康风险可以接受; 反之表明人群健康风险太大, 不可接受 (徐亚, 2014).

3.3.3 暴露参数确定 通过问卷调查, 确定了主要暴露参数的取值, 包括  $P_{\text{LW}}$ 、 $P_{\text{LF}}$  和  $DR_{\text{Fish}}$ , 分别为 100%、100% 和  $78 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ .

## 4 结果和讨论 (Results and discussion)

### 4.1 结果和分析

4.1.1 重金属含量及毒性分析 重金属污染物排放进入水环境系统后, 会在地表地下水体、沉积物乃至动植物体内发生迁移转化. 研究表明, 重金属的毒性与其浓度存在密切关系, 比如,  $\text{Zn}$ 、 $\text{Ni}$  和  $\text{Cu}$  等重金属是人体必需元素, 但一旦超过某一阈值就会产生毒性, 危害人体健康; 而  $\text{Cd}$ 、 $\text{Pb}$  等重金属虽然具有一定毒性, 但其浓度低于某一阈值时对人体健康影响很小 (风险可以忽略). 为此本研究采集了湖水、地下水、沉积物和鱼类样本, 并分析测试了各样本的重金属含量水平. 表 1 为宿鸭湖水库鲫鱼和黄颡鱼可食用部分中不同重金属含量, 表 2 则是宿鸭湖湖水及其下游受宿鸭湖补给的地下水中重金属污染物浓度, 表 3 为宿鸭湖库底沉积物中重金属含量值.

FAO/WHO 和 WHO 规定了鱼类食品中的重金属含量限值, 若鱼体中的某重金属含量大于该限值, 则认为鱼体中的该重金属具有有机体毒性. 结合表 1 可以看出,  $\text{Cr}$  和  $\text{Zn}$  在黄颡鱼和鲫鱼体内可食用部分的均值含量大于 FAO/WHO 和 WHO 规定的鱼类食品  $\text{Cr}$  含量限值 ( $1$  和  $0.05 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ), 毒性较大;  $\text{Ni}$  在黄颡鱼体内可食用部分的含量最大值 ( $1.01 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ ) 超过 WHO 规定的鱼类产品限值, 具有一定毒性;  $\text{Cu}$ 、 $\text{Cd}$  和  $\text{Pb}$  在两种鱼体内可食用部分的均值含量均低于 FAO/WHO 及 WHO 的限值, 无毒性; 对于鱼体中的  $\text{Co}$ 、 $\text{Ga}$ 、 $\text{Sr}$ 、 $\text{Sn}$ 、 $\text{Sb}$  和  $\text{Ba}$ , FAO/WHO 和 WHO 标准中没有规定, 因此, 认为上述元素也不具备人体毒性.

表 1 2 种典型经济鱼鱼体可食用部分中重金属含量的均值和最大/最小值

Table 1 Mean, maximum and minimum concentrations of metals in edible part of two typical fishes

| 鱼类           | 数据类型 | Cr   | Co   | Ni    | Cu   | Zn     | Ga | Sr   | Cd   | Sn   | Sb | Ba   | Pb   |
|--------------|------|------|------|-------|------|--------|----|------|------|------|----|------|------|
| 黄颡鱼          | 均值   | 1.62 | 0.16 | 0.52  | 2.09 | 39.88  | /  | 2.67 | 0.03 | 0.07 | /  | 2.15 | 0.85 |
|              | 最小值  | 1.19 | 0.05 | 0.003 | 1.68 | 36.51  | /  | 1.36 | 0.01 | 0.04 | /  | 1.70 | 0.70 |
|              | 最大值  | 1.85 | 0.43 | 1.01  | 2.61 | 43.46  |    | 3.98 | 0.04 | 0.15 |    | 3.05 | 0.96 |
| 鲫鱼           | 均值   | 2.11 | 0.06 | 0.39  | 4.38 | 129.01 | /  | 6.93 | 0.05 | 0.04 | /  | 4.09 | 0.42 |
|              | 最小值  | 1.75 | 0.04 | 0.28  | 3.29 | 107.03 | /  | 2.95 | 0.03 | 0.03 | /  | 2.13 | 0.35 |
|              | 最大值  | 2.43 | 0.10 | 0.46  | 5.36 | 148.03 |    | 9.66 | 0.07 | 0.07 |    | 5.05 | 0.53 |
| FAO/WHO 标准限值 |      | 1    | /    | 80    | 20   | 5      |    |      | 0.3  |      |    | 1.5  | 1.5  |
| WHO 标准限值     |      | 0.05 | /    | 0.6   | 30   | 7      |    |      | 0.3  |      |    |      | 2.0  |

卫生部(2006)和 WHO(2008)对饮用水中的重金属浓度进行了规定,若宿鸭湖湖水及其周边地下水中重金属浓度超过了对应的浓度限值,则可认为湖水(或地下水)中的该重金属具有人体毒性.结合

表 2 可以看出,12 种重金属在水体中(湖水和地下水)中的浓度均低于卫生部标准和 WHO 标准(2008),说明宿鸭湖湖水及周边地下水体中的重金属对人体无毒性危害.

表 2 地下水及宿鸭湖湖水中重金属浓度的均值和最大/最小值

| 水体                       | 数据类型 | Cr    | Co   | Ni    | Cu    | Zn    | Ga   | Sr     | Cd   | Sn   | Sb   | Ba     | Pb    |
|--------------------------|------|-------|------|-------|-------|-------|------|--------|------|------|------|--------|-------|
| 库区地下水                    | 均值   | 6.58  | 0.70 | 4.00  | 3.05  | 8.43  | 2.82 | 325.50 | 0.17 | 0.34 | 0.79 | 87.55  | 0.23  |
|                          | 最小值  | 1.56  | 0.30 | 1.85  | 1.78  | 0.35  | 0.60 | 7.67   | 0.01 | 0.05 | 0.09 | 13.74  | 0.001 |
|                          | 最大值  | 10.31 | 9.13 | 15.99 | 10.58 | 33.34 | 9.43 | 489.30 | 9.36 | 8.96 | 9.50 | 166.90 | 10.18 |
| 湖水                       | 均值   | 5.27  | 0.34 | 3.93  | 3.13  | 8.99  | 2.87 | 214.20 | 0.03 | 0.07 | 1.12 | 62.67  | 0.11  |
|                          | 最小值  | 0.91  | 0.11 | 1.66  | 0.41  | 0.52  | 0.73 | 38.29  | 0.01 | 0.02 | 0.62 | 17.02  | 0.004 |
|                          | 最大值  | 18.30 | 1.56 | 28.94 | 31.64 | 30.34 | 4.57 | 269.80 | 0.16 | 0.63 | 1.48 | 81.73  | 2.97  |
| 《生活饮用水卫生标准》(GB5749—2006) |      | 50    | /    | /     | /     | /     | /    | /      | 5    | /    | /    | /      | 10    |
| WHO 标准                   |      | 50    | /    | 70    | 2000  | /     | /    | /      | 3    | /    | 20   | /      | 10    |

美国华盛顿州的沉积物化学标准(WAC 172-204-320)中对沉积物中的重金属含量进行了规定,我国没有沉积物重金属限值的的规定,但环境保护部《土壤环境质量标准》(GB15618—1995)中对农田土壤中的重金属含量的自然背景值进行了规定.若宿鸭湖库底沉积物中重金属含量高于上述标准中的含量限值,那么可认为该重金属已经形成污染.结合表 3 可以看出,Cr、Ni、Cu、Cd 和 Pb 含量均值高于环境保护部《土壤环境质量标准》(GB15618)自然背景值,但低于美国华盛顿州沉积物化学标准(WAC 172-204-320)中含量限值,说明沉积物中上

述重金属已经形成普遍污染,但污染程度较轻;Zn 在沉积物中的含量均值为  $87.16 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ,低于环境保护部《土壤环境质量标准》(GB15618)自然背景值和美国华盛顿州沉积物化学标准(WAC 172-204-320)中的 Zn 含量限值.但沉积物中 Zn 的最大值为  $193.00 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ,高于环境保护部《土壤环境质量标准》(GB15618)自然背景值,说明沉积物中的 Zn 存在小范围污染,且程度较轻.上述标准中均无 Ga、Sr、Sn、Sb 和 Ba 的限值要求,且其在宿鸭湖水体和鱼体中的浓度均低于其毒性浓度,因此,不做进一步讨论.

表 3 宿鸭湖库底沉积物中重金属含量的均值和最大/最小值

| 数据类型                     | Cr     | Co    | Ni     | Cu     | Zn     | Ga    | Sr     | Cd   | Sn   | Sb   | Ba     | Pb    |
|--------------------------|--------|-------|--------|--------|--------|-------|--------|------|------|------|--------|-------|
| 均值                       | 83.31  | 16.81 | 44.37  | 33.75  | 87.16  | 45.49 | 143.60 | 0.49 | 3.19 | 1.28 | 614.30 | 27.49 |
| 最小值                      | 18.26  | 6.01  | 15.94  | 11.17  | 22.91  | 21.87 | 56.36  | 0.22 | 0.91 | 0.03 | 343.70 | 10.95 |
| 最大值                      | 522.90 | 27.31 | 223.10 | 113.60 | 193.00 | 70.34 | 200.40 | 1.10 | 6.81 | 9.06 | 923.10 | 53.64 |
| 《土壤环境质量标准》(GB15618)自然背景值 | 90     | /     | 40     | 35     | 100    | /     | /      | 0.2  | /    | /    | /      | 35    |
| 沉积物化学标准(WAC 172-204-320) | 260    | /     | /      | 390    | 410    | /     | /      | 5.1  | /    | /    | /      | 450   |

4.1.2 转移因子和健康风险因子 根据 3.3 节所述方法,计算得到不同重金属元素在鱼和不同环境介质间的 TF 值(表 4).从表 4 中可以看出,水和沉积物间 TF 值的数量级为  $10^3 \sim 10^4$ ,水和鱼体间 TF 值的数量级为  $10^2 \sim 10^3$ ,沉积物和鱼体间的重金属转移因子则大部分小于 1.

12 种重金属元素中,美国环保局综合风险系统

(IRIS, Integrated Risk Information System)、美国环保局“临时性同行审定毒性数据”(The Provisional Peer Reviewed Toxicity Values)和美国环保局第 3、6、9 区分局“区域筛选值(Regional Screening Levels)总表”污染物毒性数据、《污染场地风险评估技术导则(HJ25.3—2014)》污染物毒性数据表等常用毒性数据库系统(环境保护部,2014)中均无 Co、Ga、Sr、Sn、

Sb 和 Ba 毒性参数 (RfD) 的参考值,因此,不考虑其健康危害,不计算其健康风险因子,其他 6 种重金属的健康风险因子计算结果见图 2.从图 2 中可以看

出,HRI 最大的是 Cr,其次是 Pb、Zn、Cu、Ni 和 Cd.但除 Zn 外,其余重金属的 HRI 都小于可接受值 1.

表 4 重金属在介质间的平均转移因子

Table 4 Mean value of transfer factor of heavy metals in fish body from aqua environmental mediums

| 介质      | 平均转移因子            |                   |                   |                   |                   |                   |                   |                   |                   |                   |                   |                   |
|---------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
|         | Cr                | Co                | Ni                | Cu                | Zn                | Ga                | Sr                | Cd                | Sn                | Sb                | Ba                | Pb                |
| 水-沉积物   | $1.6 \times 10^4$ | $4.9 \times 10^4$ | $1.1 \times 10^4$ | $1.1 \times 10^4$ | $9.7 \times 10^3$ | $1.6 \times 10^4$ | $6.7 \times 10^2$ | $1.6 \times 10^4$ | $4.6 \times 10^4$ | $1.1 \times 10^3$ | $9.8 \times 10^3$ | $2.5 \times 10^5$ |
| 水-黄颡鱼   | $3.1 \times 10^2$ | $4.7 \times 10^2$ | $1.3 \times 10^2$ | $6.7 \times 10^2$ | $4.4 \times 10^3$ | /                 | $1.2 \times 10^1$ | $1.0 \times 10^3$ | $1.0 \times 10^3$ | /                 | $3.4 \times 10^1$ | $7.7 \times 10^3$ |
| 水-鲫鱼    | $4.0 \times 10^2$ | $1.8 \times 10^2$ | $9.9 \times 10^1$ | $1.4 \times 10^3$ | $1.4 \times 10^4$ | /                 | $3.2 \times 10^1$ | $1.7 \times 10^3$ | $5.7 \times 10^2$ | /                 | $6.5 \times 10^1$ | $3.8 \times 10^3$ |
| 沉积物-黄颡鱼 | 0.019             | 0.010             | 0.012             | 0.062             | 0.458             | /                 | 0.019             | 0.061             | 0.022             | /                 | 0.003             | 0.031             |
| 沉积物-鲫鱼  | 0.025             | 0.004             | 0.009             | 0.130             | 1.480             | /                 | 0.048             | 0.102             | 0.013             | /                 | 0.007             | 0.015             |

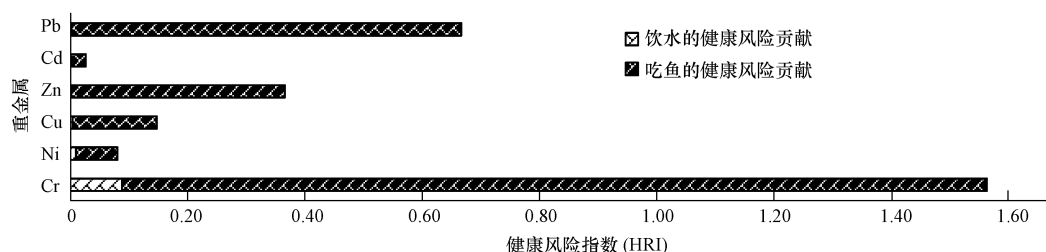


图 2 宿鸭湖库区居民的健康风险指数 (HRI)

Fig.2 Predicted health risk index of residents around Suyu Lake

## 4.2 讨论

4.2.1 不同介质中的重金属含量 从表 1~3 中可以看出,整体上,不同介质中重金属含量(除 Zn 以外)服从以下规律:沉积物中重金属含量最高,其次为鱼体中,湖水中的重金属浓度最低.以毒性元素 Cd 为例,按照含量(浓度)高低排序依次是沉积物( $0.49 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ )>鲫鱼( $0.05 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ )>黄颡鱼( $0.03 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ )>湖水( $0.03 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ );而人体必需元素 Cu,也表现出类似规律,即沉积物( $33.75 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ )>鲫鱼( $4.38 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ )>黄颡鱼( $2.09 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ )>湖水( $3.13 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ).但人体必需元素 Zn 是一个例外,鲫鱼体内的 Zn 含量( $129.01 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ )高于沉积物中的 Zn 含量( $87.16 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ ).Petra 等(2013)在研究塞尔维亚 Kalimanci 湖泊生态系统中重金属含量分布规律时也发现类似现象,即整体上重金属含量遵从沉积物>鱼类>湖水的规律,但个别重金属(Hg)出现鱼体中含量大于沉积物中含量的现象.

同一介质中不同重金属含量也存在显著差异,如沉积物中,不同重金属按照含量高低排序依次是:Ba>Sr>Zn>Cr>Ga>Ni>Cu>Co>Sn>Sb>Cd;湖水中,按照浓度高低排序依次是:Sr>Ba>Zn>Cr>Ni>Cu

>Ga>Sb>Co>Pb>Sn>Cd;黄颡鱼体内,按照含量高低排序依次是:Zn>Sr>Ba>Cu>Cr>Ni>Co>Sn>Cd;鲫鱼体内中,按照含量高低排序依次是:Zn>Sr>Cu>Ba>Cr>Ni>Co>Cd>Sn.整体上,Zn、Ba 和 Sr 在不同介质体内含量均较高,而 Sn 和 Cd 的含量均比较低.研究表明,与非养殖型湖泊比较(表 5),宿鸭湖水库中鱼体内可食用部分 Pb 和 Cr 的含量明显偏高,这可能是由于鱼饵和鱼药中含有 Pb 和 Cr (Sutherland *et al.*, 2007; Mendigucha *et al.*, 2006; 潘振声等, 2000),从而导致鱼体中 Pb 和 Cr 含量偏高.

4.2.2 转移因子 水生生态系统中的重金属在不同介质间迁移转化,如鱼体可以通过饮水吸收水体中的重金属,通过皮肤接触吸收水体和沉积物中的重金属,也可以通过排泄将体内的重金属排入水体和沉积物中;水中重金属也会通过吸附解吸与沉积物中的重金属进行相互转化.从表 4 中可以看出,重金属从湖水到鲫鱼(黄颡鱼)转移因子均远远大于 1.研究表明,当 TF 值大于 1 则表明生物体对该介质中的重金属存在富集效应,因此,鲫鱼(黄颡鱼)对于宿鸭湖水中的上述 10 种重金属均存在富集作用.

表 5 不同类型水体中鱼体的重金属含量及沉积物-鱼体转移因子  
Table 5 Metal concentration and TF from sediment to fish in different type of surface water

| 指标  | Cd        | Pb          | Cr          | Hg        | As        | Cu        | Zn         | 文献来源                      |
|---|-----------|-------------|-------------|-----------|-----------|-----------|------------|---------------------------|
| 鱼体重金属含量/( $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ) | 0.02~0.05 | 0.05~0.1    | 0.04~0.09   | 0.02~0.10 | 0.01~0.04 | 2.0~6.0   | 10~27      | 徐青,2013                   |
|   |           | 0.03~0.1    | 0.04~0.06   | 0.02~0.08 | 0.02~0.08 | Ndt       | 10~18      | 徐青,2013                   |
|   | 0.01~0.07 | 0.35~1.0    | 1190~2430   | Ndt       | Ndt       | 2.0~5.0   | 36~148     | 本研究                       |
| 转移因子  | 0.08      | Ndt         | 0.02        | Ndt       | Ndt       | 0.13      | 0.83       | Liang <i>et al.</i> ,1999 |
| (沉积物-鱼体)                                    | 0.16      | 0.048       | 0.04        | Ndt       | Ndt       | 0.07      | 0.2        | Zhou <i>et al.</i> ,1998  |
|   | 0.06~0.1  | 0.015~0.031 | 0.019~0.025 | Ndt       | Ndt       | 0.06~0.13 | 0.458~1.48 | 本研究                       |

与其他非水产养殖型水体相比(表 5),宿鸭湖水生态系统中重金属(Zn 除外)从湖水到沉积物的 TF 值远远高于从湖水到鱼的 TF 值;且从沉积物到鱼的 TF 值远远小于 1.这可能跟养殖型湖泊中鱼的生活习性有关(Rased *et al.*, 2001; Abdel-Baki *et al.*, 2011):①主要以人工饲料为食,与其他类型水体中鱼类相比,摄入底泥可能性较小;②另外,相对而言,在养殖型湖泊中,食物链相对简单,鱼的营养等级较高也可能影响其对重金属的富集。

4.2.3 食用鱼的健康效应分析 鱼类营养丰富,且肉质细嫩易于消化,被视为很多地区,尤其是不发达地区的最佳动物蛋白来源.然而,随着水环境问题日趋恶化,水体重金属污染也导致鱼体中重金属富集,危害人体健康.尤其是不发达地区,如本文研究区域,鱼类消费以本地鱼为主,因此,其重金属的健康效应问题不容忽视.从图 2 中可以看出,重金属 Cr 对人体的健康风险指数(HRI)高达 1.6,已经高于 HRI 的可接受值 1,而重金属 Pb 的 HRI 值也高达 0.65.这说明重金属暴露对人体健康危害已经较为严重,需要引起重视。

同时,根据表 6 的重金属暴露量分析可以看出,宿鸭湖周边居民可能通过食用本地鱼类和饮用地下水产生重金属暴露.另外,空气污染、食用含有重金属的粮食或蔬菜等也有可能导致居民接触并摄入重金属,这些暴露称之为背景暴露.当暴露人群食用的蔬菜和粮食中 Cr 含量极小、空气悬浮颗粒物中重金属含量极低时,背景暴露量可以忽略,此时食用本地鱼类对重金属暴露量的贡献占总暴露量的 87%以上,是导致 Cr 人体健康危害的主要途径;其中,对 Zn 和 Pb 的贡献更高达 99%以上.而对于可能导致人体危害的 Cr(HRI = 1.6),其贡献也高达 94%,这说明通过吃鱼导致的 Cr 摄入是影响周边居民身体健康的主要因素.需要指出的是,当地居民还采用宿鸭湖水进行灌溉,这可能导致湖水中的重金属富集于粮食和蔬菜上,进一步加大健康风险.因此,建议开展进一步的研究工作,通过问卷调查和现场采样获得居民食用本地粮食和蔬菜的暴露数据,以及本地粮食和蔬菜中的重金属含量水平,以进行更深入的健康风险评价工作。

表 6 不同暴露途径的重金属暴露量

Table 6 Metal exposure through different exposure routes

| 污染物 | 饮水途径暴露量/<br>( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ ) | 吃鱼暴露量/<br>( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ ) | 总暴露量/<br>( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ ) | 吃鱼对重金属<br>暴露量的贡献率 |
|-----|--|--|---|-------------------|
| Cr  | 0.26   | 4.43   | 4.69  | 94.40%            |
| Ni  | 0.20   | 1.41   | 1.60  | 87.83%            |
| Cu  | 0.16   | 5.72   | 5.88  | 97.35%            |
| Zn  | 0.45   | 109.15   | 109.59  | 99.59%            |
| Cd  | 0.00   | 0.08   | 0.08  | 97.96%            |
| Pb  | 0.01   | 2.33   | 2.33  | 99.76%            |

## 5 结论(Conclusions)

本研究以宿鸭湖水生态系统为研究对象,系统采集了宿鸭湖水生态系统中的水、沉积物和鱼类样

品,并通过实验测定了不同样品中的重金属含量水平和毒性效应,在此基础上对不同介质中的重金属含量水平、转化关系,以及其对人体健康影响进行了计算和分析,得出以下结论:

1) 12种重金属中Cr和Zn在鱼体中的均值含量超过相关标准限值,具有一定的潜在毒性;湖水和地下水中的所有重金属浓度均低于饮用水标准中的相关限值,不对人体构成毒性危害;部分沉积物样品中Cr、Ni、Cu、Zn、Cd和Pb含量超出环境保护部《土壤环境质量标准》(GB15618)自然背景值,但低于美国华盛顿州沉积物化学标准(WAC 172-204-320)中的Pb含量限值,已经构成轻微污染。

2) 不同介质间的转移因子分析表明,鱼体对湖水中的Zn、Sr、Ba、Cu、Cr、Ni、Co、Sn和Cd均存在富集作用;但除Zn以外,鱼体对沉积物中的其他重金属无明显的富集作用。

3) 宿鸭湖水生态系统中的重金属Cr对人体的HRI值为1.6,其健康危害效应不可忽视;食用鱼类是导致Cr人体健康危害的主要途径,贡献率高达94%。

4) 与非养殖型湖泊比较,宿鸭湖水库中鱼体内可食用部分Pb和Cr的含量明显偏高(10倍左右),且重金属(Zn除外)从湖水到沉积物的TF值明显偏高,而从湖水到鱼的BAF值相对较低。

#### 参考文献(References):

- Abdel-Baki A S, Dkhil M A, Al-Quraishy S. 2011. Bioaccumulation of some heavy metals in tilapia fish relevant to their concentration in water and sediment of Wadi Hanifah, Saudi Arabia [J]. *African Journal of Biotechnology*, 10 (13): 2541-2547
- Alkan N, Aktas M, Gedik K. 2012. Comparison of metal accumulation in fish species from the southeastern Black Sea [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 88: 807-812
- Alloway B J. 1995. *The Origins of Heavy Metals in Soils*//Alloway B J. (Ed.). *Heavy Metals in Soils* [M]. London: Chapman and Hall. 38-57
- Awadallah R M, Mohamed A E, Gaber S A. 1985. Determination of trace elements in fish by instrumental neutron activation analysis [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Letters*, 95 (3): 450-454
- Blaser P, Zimmermann S, Luste J, et al. 2000. Critical examination of trace element enrichments and depletions in soils: As, Cr, Cu, Ni, Pb, and Zn in Swiss forest soils [J]. *Science of Total Environment*, 249: 257-280
- Chai Y, Guo J, Chai S L, et al. 2015. Source identification of eight heavy metals in grassland soils by multivariate analysis from the Baicheng - Songyuan area, Jilin Province, Northeast China [J]. *Chemosphere*, 134: 67-75
- Chan H M, Trifonopoulos M, Ing A, et al. 1999. Consumption of freshwater fish in Kahnawake: risks and benefits [J]. *Environmental Research*, 80: 213-222
- 陈亮. 2013. 上海市售动物源食品和太湖野生鱼中微量元素暴露水平及健康风险评估[D]. 上海: 上海大学
- 董继元, 张格祥, 王玉玉, 等. 2011. 兰州地区人群对多环芳烃的暴露及健康风险评估[J]. *生态环境学报*, 21(2): 327-333
- 段小丽, 王宗爽, 李琴, 等. 2011. 基于参数实测的水中重金属暴露的健康风险研究[J]. *环境科学*, 32(5): 1329-1339
- FAO/WHO. 1984. *List of Maximum Levels Recommended for Contaminants by the Joint FAO/WHO Codex Alimentarius Commission. Second Series* [M]. Rome: CAC/FAL. 1-8
- Handy R D. 1994. Intermittent exposure to aquatic pollutants: assessment, toxicity and sublethal responses in fish and invertebrates [J]. *Comparative Biochemistry and Physiology*, 107(2): 171-184
- 霍礼辉, 林志华, 尤仲, 等. 2012. 泥蚶不同组织器官对重金属(Cu、Pb、Cd)的富集规律[J]. *海洋环境科学*, 31(3): 395-399
- Hovmand M F, Kemp K, Kystol J, et al. 2013. Atmospheric heavy metal deposition accumulated in rural forest soils of southern Scandinavia [J]. *Environment Pollution*, 155: 537-541
- 环境保护部. 2014. 污染场地风险评估技术导则[S]. 北京: 中国标准出版社
- 胡余明. 2013. 洞庭湖鱼组织中持久性有机污染物的分析评估研究[D]. 长沙: 湖南师范大学
- 郭春晶. 2013. 鄱阳湖区水环境及经济鱼类重金属污染特征研究[D]. 南昌: 南昌大学
- 国家环境保护局. 1995. 土壤环境质量标准(GB 15618-1995) [S]. 北京: 中国标准出版社
- 姜林, 彭超, 钟茂林, 等. 2014. 基于污染场地土壤中重金属人体可给性的健康风险评估[J]. *环境科学研究*, 27(4): 406-414
- 李如忠. 2007. 基于不确定信息的城市水源水环境健康风险评估[J]. *水利学报*, 38(8): 895-900
- Liang Y, Cheung R Y H, Wong M H. 1999. Reclamation of wastewater for polyculture of freshwater fish: bioaccumulation of trace metals in fish [J]. *Water Res*, 33: 2690-2700
- Liu Y, Wang, H Q, Li Y S. 2011. Current progress of environmental risk assessment research [J]. *Procedia Environmental Sciences*, 8: 1477-1483
- Luo X S, Xue Y, Wang Y L, et al. 2015. Source identification and apportionment of heavy metals in urban soil profiles [J]. *Chemosphere*, 127: 152-157
- Mitra A, Chowdhury R, Banerjee K. 2012. Concentrations of some heavy metals in commercially important finfish and shellfish of the River Ganga [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 184: 2219-2230
- Matias K, Ari-Pekka Le, Antti K. 2015. Transfer factors and effective half-lives of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in different environmental sample types obtained from Northern Finland: case Fukushima accident [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 146: 73-79
- Mendigucha C, Moreno C, Muel Vez M P, et al. 2006. Preliminary investigation on the enrichment of heavy metals in marine sediments originated from intensive aquaculture effluents [J]. *Aquaculture*, 254: 317-325
- 秦普丰, 郭雯, 雷鸣. 2008. 湘江湘潭段水环境主要污染物的健康风险评估[J]. *环境科学研究*, 21(4): 190-195
- 潘振声, 施国跃, 丁由中. 2000. 人工养殖与野生扬子鳄卵中重金属含量分析[J]. *上海环境科学*, 19(10): 489-491



- Petra V, Juan P A, Todor S, *et al.* 2013. Potentially toxic contamination of sediments, water and two animal species in Lake Kalimanci, FYR Macedonia: Relevance to human health [ J ]. *Environmental Pollution*, 180: 92-100
- Rased M N. 2001. Monitoring of environmental heavy metals in fish from Nasser Lake [ J ]. *Environment International*, 27: 27-33
- Starr M, Lindroos A J, Ukonmaanaho L, *et al.* 2003. Weathering release of heavy metals from soil in comparison to deposition, litter fall and leaching fluxes in a remote, boreal coniferous forest [ J ]. *Apply Geochemical*, 18: 607-613
- Solgi E, Esmaili-Sari A, Riyahi-Bakhtiari A, *et al.* 2003. Soil contamination of metals in the three industrial estates, Arak, Iran [ J ]. *Bulletin of Environmental Contamination & Toxicology*, 88: 634-638
- Sutherland T F, Petersen S A, Levings C D, *et al.* 2007. Distinguishing between natural and aquaculture-derived sediment concentrations of heavy metals in the Broughton Archipelago, British Columbia [ J ]. *Marine Pollution Bulletin*, 54: 1451-1460
- 孙超, 张翠, 陈振楼, 等. 2009. 上海市主要饮用水源地水重金属健康风险初步评价 [ J ]. *环境科学研究*, 22(1): 60-65
- 卫生部. 2006. 生活饮用水卫生标准 (GB5749-2006) [ S ]. 北京: 中国标准出版社
- WHO. 2008. *Guidelines for Drinking Water Quality (3<sup>rd</sup> Edition)* [ S ]. Geneva: WHO
- 王德庆. 2013. 太湖鱼体中 PAHs 和 OCPs 的暴露水平、分布特征和人体健康风险评估 [ D ]. 上海: 上海大学
- 夏泽慧, 王兴明, 楼巧婷, 等. 2012. 合肥市场 6 种淡水鱼体内 Cu、Pb 和 Cd 的分布及食用风险 [ J ]. *环境科学研究*, 25(3): 311-315
- 徐亚, 朱雪梅, 刘玉强, 等. 2014. 基于随机-模糊耦合的污染场地健康风险评价及案例 [ J ]. *中国环境科学*, 34(10): 2692-2700
- 徐青. 2013. 重金属污染在不同水体淡水鱼中的分布特征及健康风险评估 [ D ]. 上海: 上海大学
- 张鹏岩, 赵玉凤, 陈云增, 等. 2013. 湖底沉积物重金属含量与空间变异规律——以河南省驻马店市宿鸭湖为例 [ J ]. *安全与环境学报*, 13(3): 125-129
- 赵霖, 鲍善芬. 2009. 坚持传统饮食结构, 提高全民健康素质 [ J ]. *中国食物与健康*, (4): 60-62
- Zhou H Y, Cheung R Y H, Chan K M, *et al.* 1998. Metal concentrations in sediments and tilapia collected from inland waters of Hong Kong [ J ]. *Water Res*, 32: 3331-3340