

DOI: 10.11758/yykxjz.20161227002

http://www.yykxjz.cn/

韩丹丹, 赵峰, 牟伟丽, 张道旭, 周德庆. 黄渤海鱼类优先监控重金属污染物的筛选与评价. 渔业科学进展, 2018, 39(1): 46–53  
Han DD, Zhao F, Mu WL, Zhang DX, Zhou DQ. Hazard analysis and screening of the prior heavy metals of priority pollution in fish in the Yellow Sea and the Bohai Sea. Progress in Fishery Sciences, 2018, 39(1): 46–53

## 黄渤海鱼类优先监控重金属 污染物的筛选与评价\*

韩丹丹<sup>1,2</sup> 赵峰<sup>1</sup> 牟伟丽<sup>3</sup> 张道旭<sup>3</sup> 周德庆<sup>1①</sup>

(1. 青岛海洋科学与技术国家实验室 海洋药物与生物制品功能实验室 中国水产科学研究院黄海水产研究所 青岛 266071; 2. 上海海洋大学食品学院 上海 201306; 3. 蓬莱京鲁渔业有限公司 烟台 265600)

**摘要** 本研究采用文献检索及历史数据分析的方法,对黄渤海鱼类体内重金属污染情况进行分析,最终筛选出需优先监控的重金属污染物。结果显示,通过对黄渤海鱼类体内重金属含量的超标率、检出率和限量标准进行分析,甄别出需优先监控的重金属有 Cr、As、Cd、Pb 和 Hg。结合各污染物的生物富集因子(Bioconcentration Factors, BCF)、毒性效应、污染指数和超标率等,用综合评价法分析确定黄渤海鱼类优先监控重金属污染物。总体评价结果为  $Cd > Hg > As^* > Cr > Pb$ , 其中, Cd 的综合评价总分最高,需高度关注。按照鱼类品种进一步分析显示,舌鳎(*Cynoglossus robustus*)、蓝点马鲛(*Scomberomorus niphonius*)体内的 Cd 和矛尾复鰕虎鱼(*Symeochogobius hasta*)体内的  $As^*$  属于优先监控对象。对黄渤海 8 个沿岸城市进行取样,检测结果表明,舌鳎和蓝点马鲛体内的 Cd 属于优先监控污染物,与筛选结果基本一致,证明了此评价方法的可靠性。

**关键词** 黄渤海; 优先监控重金属; 筛选; 综合评价

**中图分类号** TS201.6 **文献标识码** A **文章编号** 2095-9869(2018)01-0046-08

据《中国渔业统计年鉴》(2016)显示,2015 年我国海产鱼的产量超过 1036.13 万 t, 占我国水产品总产量的 30.4% 以上。海产鱼是一种优质的食物蛋白来源,对解决我国食物供给问题,改善食物营养结构发挥了重要作用。海产鱼的质量安全现状与海洋环境息息相关,随着人们对海洋资源的开发,海洋环境的污染问题也日趋显现,重金属的污染问题已成为最受关注的问题之一。

重金属可通过大气沉降、自然活动(岩石风化、火山爆发等)和人类活动(工业废水、生活污水、采矿等)等进入水生系统。人类活动是海洋环境中重金属

污染物的主要来源(李晶等, 2015; 田金等, 2009)。重金属在生物体内具有易富集、难降解的特点,处于生物链顶端的人类摄入的重金属比其他生物多,过多的重金属在人体内会影响酶的活性、新陈代谢,甚至导致死亡(Varsha, 2013)。因此,国内外开展了大量实验来研究重金属的来源及其分布(Zuo *et al*, 2009; 张彦等, 2014; 董彬, 2012)、生物毒性作用(Diacomanolis *et al*, 2014; Hirano *et al*, 2013)及消减的方法(陈志良等, 2001; 聂亚平等, 2016)。由于重金属污染物的种类较多,在水产品检测中逐项检测耗时费力,如何快速有效筛选出水产品中优先监控的重金属污染物成为保

\* 国家科技支撑计划课题(2015BAD17B01)和中国水产科学研究院黄海水产研究所基本科研业务费(20603022016002)共同资助[This work was supported by the National Science and Technology Support Plan Project (2015BAD17B01), and Special Scientific Research Funds for Central Non-Profit Institutes, Yellow Sea Fisheries Research Institute, Chinese Academy of Fishery Sciences (20603022016002)]. 韩丹丹, E-mail: silent\_hdd@163.com

① 通讯作者: 周德庆, 研究员, E-mail: zhoudq@ysfri.ac.cn

收稿日期: 2016-12-27, 收修改稿日期: 2017-01-17

证鱼类质量安全的重要环节。

目前,关于优先监控污染物筛选的研究主要应用在水质监测(Yan *et al*, 2015; 于云江等, 2013)、空气质量监测(Elbir *et al*, 2004; 黄震, 1997)、土壤质量监测(Matamoros *et al*, 2007)等方面,而在食品安全领域,尤其是水产品质量安全领域中的研究和应用较少。本研究的主要目的是采用综合评价方法对黄渤海海产鱼体内优先监控重金属进行筛选和分析评价,通过大数据文献检索获得黄渤海海域鱼类中重金属的污染监测状况、危害、限量标准等数据,确定不同评价因子的权重进行初步的危害分析,筛选出需要优先进行监控和重点关注的重金属危害因子,以期为我国海产鱼类的质量安全监管、保障消费者食用安全和促进渔业的健康可持续发展提供理论依据和数据支持。

## 1 材料与方法

### 1.1 资料检索

检索范围:政府类资源,包括国家食品药品监督管理局、中华人民共和国农业部、中华人民共和国国家卫生部、世界卫生组织(WHO)、国际癌症研究机构(International Agency for Research on Cancer, IARC);近 20 年的学术研究成果等。

检索途径:以电子文献为主,图书等实体资料为辅,包括国内外各政府部门发布的研究报告和监测数据、中(英)文期刊数据库、国际会议论文数据库、食品卫生类、化学类书籍等。

检索关键词:重金属、重金属+毒性效应、水产品+重金属、鱼+重金属、水产品+污染物、水产品+优先污染物、海洋+重金属等。

### 1.2 资料分析

频率分析:主要包括国内外污染物限量标准和禁用情况的统计、相关部门规定的必检项目的统计、水产品中重金属污染物的检出率及超标率的计算。

理化性质与毒理学分析:污染物致癌性的相关数据来自 IARC;健康指导剂量参考联合国粮农组织和

世界卫生组织食品添加剂联合专家委员会(JECFA)给出的暂定每 7 d 可耐受摄入量(PTWI);遗传毒性、其他毒性、人体危害资料及半数致死量来自文献(王明强, 2008; 余晓星等, 1997; 金树兴等, 2009; 孙相等, 2014; 吴丰昌等, 2011; 刘建明, 2015; Govind *et al*, 2014; Baby *et al*, 2010)。

### 1.3 数据整理

对近 20 年的相关文献进行检索,收集有效数据(包括作者、采样时间、采样地点、样品种类及污染物含量),对其进行分类整理并及时建立相应数据库。

### 1.4 综合评价法

综合评价法采用打分的方式,对各污染物的指标进行分级并加权赋分,再将各单项的得分进行叠加,即为每一种污染物的综合得分,按综合得分的多少进行排序,筛选出特征污染物,从而达到筛选和评价的目的(崔建升等, 2009)。本研究采用周泽义等(2000)提出的模糊数学综合评价法,评价因子包括污染指数( $P_i$ =污染物含量/限量标准)、超标率( $\omega$ )、毒性效应( $I$ )及生物富集因子( $B$ ),评分标准见表 1、表 2。综合评价的具体公式为:  $U=2\times P_i+3\times\omega+3\times I+2\times B$ 。

### 1.5 样品采集

实验样品于 2016 年 9~10 月分别在辽宁大连、天津、山东东营、莱州、烟台、威海、青岛、日照的港口及码头上采集,样品采集后加冰于 16 h 之内运至实验室,用蒸馏水洗去样品表面杂质,装在样品袋中,  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$  保存,直至测样时取出。样品种类包括舌鳎(*Cynoglossus robustus*)、鲮鱼(*Mugil cephalus*)、矛尾复鰕虎鱼(*Synechogobius hasta*)、蓝点马鲛(*Scomberomorus nipponius*)和小黄花(*Larimichthys polyactis*)。

### 1.6 检测方法

样品中的重金属检测按照国家标准中的方法进行, Pb、Cd 和 Cr 采用石墨炉原子吸收光谱法,无机砷、甲基汞采用液相色谱-原子荧光光谱法。

表 1 污染指数评分标准(贾晓平等, 2000)

Tab.1 The score principle of pollution index (Jia *et al*, 2000)

分值 Score	污染指数 Pollution index	污染程度 Degree of pollution
1	$P_i \leq 0.2$	正常背景值水平 Normal background level
2	$0.2 < P_i \leq 0.6$	轻污染水平 Light pollution levels
3	$0.6 < P_i \leq 1.0$	中污染水平 Medium pollution levels
4	$1.0 < P_i$	重污染水平, 即超标 Heavy pollution level, exceeding standard

表 2 超标率和生物富集因子评分标准(周泽义等, 2000)  
Tab.2 The score principle of exceeding standard rate and BCF (Zhou *et al*, 2000)

分值 Score	超标率 Exceeding standard rate (%)	生物富集因子 BCF
1	$\omega \leq 10.0$	$B < 10$
2	$10.0 < \omega \leq 20.0$	$B < 100$
3	$20.0 < \omega \leq 30.0$	$B < 1000$
4	$30.0 < \omega \leq 40.0$	$B < 10000$
5	$40.0 < \omega \leq 50.0$	$B > 100000$
6	$50.0 < \omega$	

## 1.7 数据统计分析

运用 Excel 2013 和 Origin 8.5 软件进行数据分析和制图。

## 2 结果与分析

### 2.1 水产品中重金属污染物的甄别

重金属超标一直是影响我国食品污染的主要原因之一, 不仅影响了我国居民的身体健康, 而且影响了我国食品的出口贸易。近几年, 欧盟食品和饲料快速预警系统(Rapid Alert System for Food and Feed, RASFF)通报的我国食品安全问题主要是霉菌毒素、重金属超标、污染物迁移、兽药残留和标签不正确等, 其中, 重金属超标问题已成为仅次于霉菌毒性的第二大问题, 具体趋势见图 1。从图 1 可以看出, 2007 年的重金属超标事件的通报数量最多, 达 50 起。近 5 年, RASFF 通报我国食品重金属超标的数量约为 18 起/年, 仅在 2014 年略有增加。搜集到的有效文献资料中(截止到 2016 年 9 月 21 日), 1996~2001 年黄渤海海产鱼体内重金属检测的文献资料占 23%, 2007~2011 年占 38%, 2012~2016 年占 31%, 由此可以看出, 人们对水产品中重金属的关注度呈上升趋势; 2002~2006 年重金属的关注度较低, 可能是因为

这期间水产品药物残留事件频发, 如 2005 年的孔雀石绿事件、2006 年的多宝鱼事件等。

自然界的重金属约有 45 种, 环境污染监测主要关注的重金属有 Pb、Hg、Cd、As、Cr、Cu、Zn、Mn、Ni、Ag 等, 通过黄渤海海域鱼类中重金属的检测频次、超标率以及限量标准 3 个指标对重金属种类进行甄别, 在甄别中优先选用中华人民共和国卫生部食品安全国家标准(GB2762-2012)(2013)。从表 3 中可以看出, Mn 和 Ag 基本不作为重金属污染物来检测, Cu、Zn、Ni 虽然有检测数据, 但国标中没有相应的限量标准, 不对其进行分析。通过以上数据分析, 甄别出的重金属污染物有 Pb、Hg、Cd、As 和 Cr。

### 2.2 毒性效应因子的评分标准

根据风险评估的原则, 毒性效应的评价因子包括健康指导剂量、半数致死量、致癌性、遗传毒性、其他毒性和人体危害资料, 各因子的权重分值见周少君等(2015), 打分结果见图 2。从图 2 可以看出, Cr、

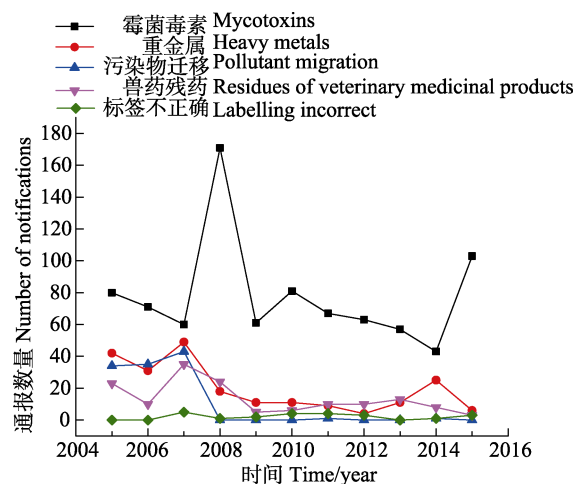


图 1 2000~2011 年 RASFF 通报中国食品风险因素  
Fig.1 The first five risk factors on Chinese food safety in 2000~2011 notified by RASFF

表 3 不同重金属的检测频次及超标率  
Tab.3 Tested frequency and exceeding standard rates of different heavy metals

项目 Items	铬 Cr	锰 Mn	镍 Ni	铜 Cu	锌 Zn	砷 As*	银 Ag	镉 Cd	汞 Hg	铅 Pb
频次 Testing frequency	66	0	9	73	61	65	0	97	68	96
超标率 Exceeding standard rate (%)	10.9	0	-	-	-	12.3	0	16.5	0	32.3

- 为没有进行数据分析; \*为本次参考的数据大部分是按总 As 进行检测, 为了评价的准确性, 需要将总砷和无机砷进行换算, 在文献资料中, As<sub>i</sub> 占总 As 的比值是 0.02%~6.88% (Muñoz *et al*, 2000; 王璞等, 2014), 为了保证评估的可靠性和食品的安全性, 应该选择能把所有风险都纳入的评估数据, 因此选择比值 6.88%

- meant no data; \* most of the data were tested according to the total As. In order to be accurate, we converted the total arsenic to inorganic arsenic. In the literature, the ratio was 0.02%~6.88% of total As (Muñoz *et al*, 2000; Wang *et al*, 2014). In order to ensure the reliability of the evaluation and food safety, we chose data that included all risk assessments and the selected value was 6.88%

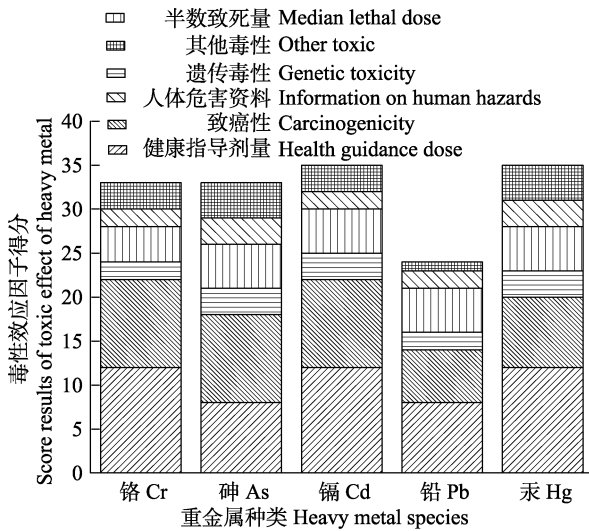


图 2 重金属毒性效应因子打分结果

Fig.2 The scores of toxic effects of heavy metals

As 和 Cd 的致癌分值都是最高的,属于已经确认的人类致癌物;从遗传毒性分析,As、Cd、Hg 的毒性是最高的;从总分来看,Cd 和 Hg 的毒性效应最强。

### 2.3 黄渤海海产鱼体内优先监控重金属污染物的筛选

从近 20 年黄渤海海产鱼体内重金属含量的数据

中查找获得有效文献 113 篇,有效数据 535 个,对不同重金属的平均污染物、超标率、毒性效应、富集因子(贺志鹏等, 2008; 孙剑等, 2010; 周德庆, 2013)及综合评分进行计算整理,根据文献分析,结合我国海域环境中重金属的污染现状,将污染物是否需要优先监控的阈值定为 120。从表 4 可以看出,Cd 的综合评分最高,优先顺序为 Cd> Hg> As<sup>\*</sup>> Cr> Pb。

### 2.4 黄渤海海域不同鱼体内优先监控重金属污染物的筛选

在整理出的数据中,筛选出研究数据较多的 5 种鱼,分别是舌鳎、鲮鱼、矛尾复鰕虎鱼、蓝点马鲛和小黄花,通过综合评价法对其进行优先监控重金属污染物的分析结果见图 3。从图 3 可以看出,根据各评价因子得分及其权重,计算得到的各鱼体内重金属的综合评价分值,Pb 的综合评分在 5 种鱼体内都是最低的;鲮鱼和小黄花体内的 5 种重金属综合评分都在阈值以下,均不属于优先监控范围;舌鳎、蓝点马鲛体内的 Cd 和矛尾复鰕虎鱼体内的 As<sup>\*</sup>分值都大于 120,属于优先监控的污染物。

表 4 黄渤海鱼体内重金属含量情况及综合评分结果

Tab.4 The heavy metal contents in fish in the Yellow Sea and the Bohai Sea and scores of the comprehensive assessment

污染物种类	平均污染指数	超标率	毒性效应	富集因子	综合评分
Pollutant species	Average pollution index	Exceeding standard rate (%)	Toxic effect	BCF	Comprehensive assessment
铬 Cr	0.375	10.9	33	3	115
砷 As <sup>*</sup>	0.987	13.8	33	3	117
镉 Cd	0.578	16.5	35	4	123
铅 Pb	0.780	32.3	24	4	98
汞 Hg	0.085	0	35	4	118

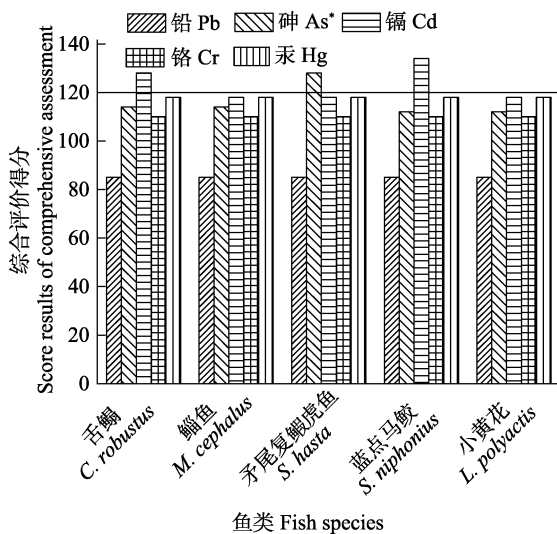


图 3 不同鱼体内重金属综合评分

Fig.3 The scores of the comprehensive assessment of heavy metals in different fish species

### 2.5 黄渤海沿海城市海产鱼体内重金属含量分析

在黄渤海沿岸 8 个采样点采集具有代表性的 5 个鱼品种,共 40 个样品。检测结果显示,Cd 的超标率是最高的,为 17.5%;Hg 的检出率是最高的,为 57.5%,但都未超标;这与之前历史数据分析得到的优先顺序(Cd>Hg>As<sup>\*</sup>>Cr>Pb)相吻合。鱼体内 As、Pb、Cr 和 Hg 的含量均属于正常背景值( $P_i \leq 0.2$ )范围,整体来看,黄渤海海产鱼体内重金属优先监控的顺序是 Cd>Hg>Cr>Pb>As,这与之前筛选出来的优先顺序基本一致,具体结果见图 4、图 5。在本研究中鱼体内没有检出 As<sub>i</sub>,这与黄强等(2015)、杨惠芬等(2003)的研究结果一致。

对不同重金属在不同鱼体内的含量情况进行综合评价,结果见图 5。从图 5 中对比发现,舌鳎和蓝点马鲛体内 Cd 仍属于优先监控的目标。历史数据分

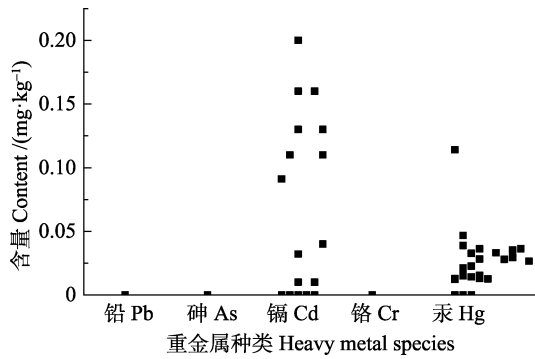


图4 黄渤海鱼体内重金属含量分布

Fig.4 The distribution of contents of heavy metals in fish in the Yellow Sea and the Bohai Sea

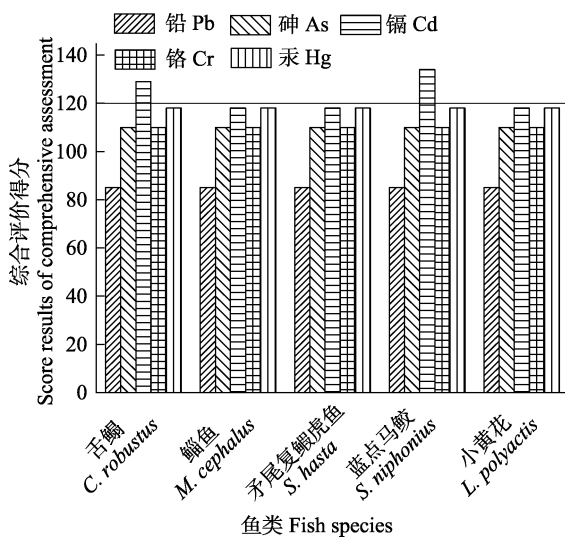


图5 黄渤海鱼体内重金属检测结果

Fig.5 The test results of heavy metals in fish in the Yellow Sea and the Bohai Sea

析显示, 矛尾复鰕虎鱼体内的 As 属于优先监控重金属污染物, 但现阶段的综合评价结果比历史综合评价低, 在后期需加强监控; 另外, 现阶段的研究显示, 5 种鱼体内的  $As_i$  均不属于优先监控的范围。已有确切研究表明,  $As_i$  对人体的危害较大, 而对有机 As 的毒性评价尚且存在争议, 因此, 海产鱼体内 As 含量的检测仍需加以关注。本研究结果与历史数据分析得到的结论基本一致, 说明本筛选方法的可行性, 但是, 要想更加准确地筛选出污染物的种类, 应加强监测频率并及时更新数据库。

### 3 讨论

As 按形态可分为无机砷和有机砷, 其中, 无机砷主要包括  $As(III)$  和  $As(V)$ , 鱼体内的有机砷主要包括  $AsB$ 、 $AsC$ 、 $DMA$ 、 $MMA$ 、 $TMAO$ 、 $TMA^+$ , 其毒性排序为  $As(III) > As(V) > TMA^+ > MMA > DMA > TMAO >$

$AsC > AsB$  (Gong *et al.*, 2002)。鱼体内的 As 主要以有机砷的形式存在(李卫华, 2011), 有机砷的毒性较低, 甚至有些被认为是无毒的, 如  $AsC$ 、 $AsB$ (Gong *et al.*, 2002; Wu *et al.*, 2014)。但近年来研究发现, 有机砷可以改变人体基因的表达, 具有遗传毒性和致癌性(Mauro *et al.*, 2016); 也有研究发现, 甲基化三价砷比  $As(V)$  的毒性更大(Petrick *et al.*, 2000), 同时, Cullen 等(2016)也发现, 甲基亚砷酸可能比  $As(III)$  的毒性更大。不同鱼体内无机砷占总砷的比值不同, 张文德(2007)研究发现, 海产鱼体内  $As_i$  占总 As 的比例为 0.2%~3.4%, 李卫华等(2011)在对海产品体内无机砷研究表明, 鱼体内的  $As_i$  占总 As 的 0.8%~1.7%, Muñoz 等(2000)研究表明, 海产鱼体内无机砷的比例为 0.018%~6.88%, 王瑛等(2014)研究显示, 海鱼体内无机砷比例为 0.59%~1.13%, 作为食品安全评估, 应该把所有危险性都进行考虑, 本研究在综合评价中, 选择资料中无机砷比例的最大值 6.88% 为参考值。

水体环境可以影响水生生物对重金属的富集能力。水体中营养元素的含量会影响水生生物机体对重金属的吸收, 低营养水平的水体会促进机体对重金属进行更有效的吸收, 在低钙水体中, 鱼类通过摄食会吸收更多重金属元素, 如 Hg、Cd 和 Pb, 另外, 水的 pH 对化合物的存在形式和金属的溶解性有较大影响, 进一步影响鱼类对金属的富集能力以及金属离子的毒性效应(Qiu, 2015)。相同环境下, 不同食物链级别的鱼类体内重金属含量不同, 食物链高端的肉食性鱼类对重金属的富集能力高于杂食性和滤食性鱼类(杨婉玲等, 2007), 蓝点马鲛等大型肉食性鱼类体内富集 Hg 的能力比浮游生物、碎屑食性的鱼类高, 同时, Coelho 等(2013)研究发现, Hg 有明显的生物放大作用; 总体看来, 底层鱼类体内重金属含量较高。不同鱼类对重金属的富集能力不同, 这与本研究结果一致。在本研究中, 鲮鱼体内重金属综合评分都低于阈值, Cd 只在舌鳎和蓝点马鲛体内属于优先监控污染物。同种鱼类对不同重金属富集能力不同, 张敬怀等(2005)研究发现, 鱼类对重金属的富集能力顺序为  $Pb > Hg > As > Cd$ 。影响重金属在海洋生物体内富集的因素有很多, 主要包括有机体的代谢机制、生长发育阶段、摄食习性等生物自身条件以及水体中重金属的浓度、暴露时间、重金属形态、水环境的理化性质等外界条件的影响(葛奇伟, 2012; 孙珊等, 2017)。

优先监控污染物的筛选是水产品质量安全领域新的研究方向。该方法把历史数据作为参考进行甄别

分析, 对水产品质量安全监管具有重要的实际意义。但是, 污染物筛选过程中存在不确定性因素, 如何更全面地对这些因素进行综合评价将是今后研究探讨的重点。

## 参 考 文 献

- Baby J, Raj JS, Biby ET, *et al.* Toxic effect of heavy metals on aquatic environment. *International Journal of Biological and Chemical Sciences*, 2010, 4(4): 939–952
- Chen ZL, Qiu RL, Zhang JS, *et al.* Removed technology of heavy metal pollution in soil. *Engineering and Technology*, 2001(8): 21–23 [陈志良, 仇荣亮, 张景书, 等. 重金属污染土壤的修复技术. *环境保护*, 2001(8): 21–23]
- Coelho JP, Mieiro CL, Pereira E, *et al.* Mercury biomagnification in a contaminated estuary food web: Effects of age and trophic position using stable isotope analyses. *Marine Pollution Bulletin*, 2013, 69(1–2): 110–115
- Cui JS, Xu FC, Liu D, *et al.* Progress in methods of screening priority pollutants. In: Chinese Society for Environmental Science in 2009, Wuhan [崔建升, 徐富春, 刘定, 等. 优先污染物筛选方法进展. 见: 中国环境科学学会 2009 年学术年会, 武汉]
- Culler WR, Liu Q, Lu X, *et al.* Methylated and thiolated arsenic species for environmental and health research and mdash: A review on synthesis and characterization. *Journal of Environmental Sciences*, 2016, 49(7): 7–27
- Diacomanolis V, Noller BN, Ng JC. Bioavailability and pharmacokinetics of arsenic are influenced by the presence of cadmium. *Chemosphere*, 2014, 112: 203–209
- Dong B. Research advance of soil heavy metal pollution in China. *Ecological Science*, 2012, 31(6): 683–687 [董彬. 中国土壤重金属污染修复研究展望. *生态科学*, 2012, 31(6): 683–687]
- Elbir T, Muezzinoglu A. Estimation of emission strengths of primary air pollutants in the city of Izmir, Turkey. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(13): 1851–1857
- Fisheries and Fishery Administration of the Ministry of Agriculture. *China Fishery Statistics Yearbook*. Beijing: China Agriculture Press, 2016 [农业部渔业渔政管理局. 中国渔业统计年鉴. 北京: 中国农业出版社, 2016]
- Ge QW. Studies on characteristic selection of heavy metal pollution for cultured molluscs and their risk assessment. Master's Thesis of Ningbo University, 2012, 51–52 [葛奇伟. 养殖贝类重金属特征污染物的筛选及其风险评估. 宁波大学硕士学位论文, 2012, 51–52]
- Gong Z, Lu X, Ma M, *et al.* Arsenic speciation analysis. *Talanta*, 2002, 58(1): 77–96
- Govind P, Madgyru S. Heavy metals causing toxicity in animals and fishes. *Research Journal of Animal, Veterinary and Fishery Sciences*, 2014, 2(2): 17–23
- He ZP, Song JM, Zhang NX, *et al.* Variation characteristic and controlling factors of heavy metals in the South Yellow Sea surface sea waters. *Environmental Science*, 2008, 29(5): 1153–1162 [贺志鹏, 宋金明, 张乃星, 等. 南黄海表层海水重金属的变化特征及影响因素. *环境科学*, 2008, 29(5): 1153–1162]
- Hirano S, Watanabe T, Kobayashi Y. Effect of arsenic on modification of promyelocytic leukemia (PML): PML responds to low levels of arsenite. *Toxicology and Applied Pharmacology*, 2013, 273(3): 590–599
- Huang Q, Zhao J, Chen SG, *et al.* Investigation and evaluation of heavy metal content in edible fish available in a seafood market of Laizhou. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2015, 43(5): 248–251 [黄强, 赵静, 陈升桂, 等. 莱州海产品市场食用鱼类中重金属含量调查及评价. *安徽农业科学*, 2015, 43(5): 248–251]
- Huang Z. Application of comprehensive marking index system to screening environmental prior pollutants. *Shanghai Environmental Sciences*, 1997, 16(6): 19–21 [黄震. 综合评分指标体系在环境优先污染物筛选中的应用. *上海环境科学*, 1997, 16(6): 19–21]
- Jia XP, Lin Q, Li CH, *et al.* Concentrations and temporal-spatial variation trend of Pb in the oysters from Guangdong coastal waters. *Journal of Fisheries of China*, 2000, 24(06): 527–532 [贾晓平, 林钦, 李纯厚, 等. 广东沿海牡蛎体 Pb 含量水平及时空变化趋势. *水产学报*, 2000, 24(6): 527–532]
- Jin SX, Zhu KC, Xu M. Studies on accumulative toxicity of cadmium in experimental mice. *China Animal Husbandry and Veterinary Medicine*, 2009, 36(08): 200–202 [金树兴, 朱奎成, 徐敏. 小鼠镉的蓄积性毒性试验研究. *中国畜牧兽医*, 2009, 36(8): 200–202]
- Li J, Luan YN, Sun XY, *et al.* Research advances in remediation of heavy metal contaminated water bodies by aquatic plants. *World Forestry Research*, 2015, 28(2): 31–35 [李晶, 栾亚宁, 孙向阳, 等. 水生植物修复重金属污染水体研究进展. *世界林业研究*, 2015, 28(2): 31–35]
- Li WH, Liu YH. Analysis of arsenic speciation in sea fish and shellfish by using anion/cation exchange high performance chromatography coupled with inductively coupled plasma-mass spectrometry. *Chinese Journal of Analytical Chemistry*, 2011, 39(10): 1577–1581 [李卫华, 刘玉海. 阴/阳离子交换色谱-电感耦合等离子体质谱法分析鱼和贝类海产品砷的形态. *分析化学*, 2011, 39(10): 1577–1581]
- Liu JM. Influence of main contaminants in water environment on aquatic organism. *Sichuan Environment*, 2015, 34(3): 69–72 [刘建明. 水体中主要污染物对水生生物的影响. *四川环境*, 2015, 34(3): 69–72]
- Matamoros V, Puigagut J, García J, *et al.* Behavior of selected priority organic pollutants in horizontal subsurface flow constructed wetlands: A preliminary screening. *Chemosphere*, 2007, 69(9): 1374–1380
- Mauro M, Caradonna F, Klein CB. Dysregulation of DNA methylation induced by past arsenic treatment causes

- persistent genomic instability in mammalian cells. *Environment and Molecular Mutagenesis*, 2016, 57(2): 137–150
- Ministry of Health of the People's Republic of China. National food safety standard. Limit of pollutants in food(GB 2762-2012), 2013 [中华人民共和国卫生部. 食品安全国家标准. 食品中污染物限量(GB 2762-2012), 2013]
- Muñoz O, Devesa V, Suner MA, *et al.* Total and inorganic arsenic in fresh and processed fish products. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2000, 48(9): 4369–4376
- Nie YP, Wang XW, Wan JR, *et al.* Research progress on heavy metal (Pb, Zn, Cd, Cu) hyperaccumulating plants and strengthening measures of phytoremediation. *Ecological Science*, 2016, 35(2): 174–182 [聂亚平, 王晓维, 万进荣, 等. 几种重金属(Pb、Zn、Cd、Cu)的超富集植物种类及增强植物修复措施研究进展. *生态科学*, 2016, 35(2): 174–182]
- Patrick JS, Ayala-Fierro F, Cullen WR, *et al.* Monomethylarsonous acid (MMA(III)) is more toxic than arsenite in Chang human hepatocytes. *Toxicology and Applied Pharmacology*, 2000, 163(2): 203–207
- Qiu YW. Bioaccumulation of heavy metals both in wild and mariculture food chains in Daya Bay, South China. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2015, 163(B): 7–14
- Sun J, Gu XY, Zhang AQ, *et al.* Organism qualities and pollution assessment at the Yellow Sea of Jiangsu Province. *Marine Sciences*, 2010, 34(6): 28–33 [孙剑, 顾雪元, 张爱茜, 等. 江苏省黄海海域生物质量调查及污染评价. *海洋科学*, 2010, 34(6): 28–33]
- Sun S, Zhao YT, Wang LM, *et al.* Status of heavy metal pollution in the shellfish culture area of Shandong Province and the risk analysis of heavy metal elements in the shellfish. *Progress in Fishery Sciences*, 2017, 38(4): 118–125 [孙珊, 赵玉庭, 王立明, 等. 山东省主要贝类养殖区重金属环境状况及贝类安全风险. *渔业科学进展*, 38(4): 118–125]
- Sun XH, Ning HM, Li C, *et al.* Acute toxic effects of lead acetate on mice. *Journal of Northwest A and F University (Natural Sciences)*, 2014, 42(9): 11–16 [孙相和, 宁红梅, 李冲, 等. 醋酸铅对小鼠的急性毒性效应. *西北农林科技大学学报(自然科学版)*, 2014, 42(9): 11–16]
- Tian J, Li C, Wan L, *et al.* The advances of heavy metal pollution in marine environment. *Fisheries Science*, 2009, 28(07): 413–418 [田金, 李超, 宛立, 等. 海洋重金属污染的研究进展. *水产科学*, 2009, 28(7): 413–418]
- Varsha G. Mammalian feces as bio-indicator of heavy metal contamination in Bikaner Zoological Garden, Rajasthan, India. *Research Journal of Animal, Veterinary and Fishery Sciences*, 2013, 1(5): 1–4
- Wang MQ. Hazards and prevention of arsenic pollution in food. *China Brewing*, 2008(20): 87–88 [王明强. 食品中砷污染的危害及其防治. *中国酿造*, 2008(20): 87–88]
- Wang Y, Chen MM, Tan TT, *et al.* Research progress on arsenic species in seafood and their metabolic mechanisms. *Modern Food Science and Technology*, 2014, 30(11): 256–265 [王瑛, 陈苗苗, 谭婷婷, 等. 海产品中的砷及其代谢机制的研究进展. *现代食品科技*, 2014, 30(11): 256–265]
- Wu FC, Feng CL, Cao YJ, *et al.* Toxicity characteristic of zinc to freshwater biota and its water quality criteria. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2011, 6(4): 367–382 [吴丰昌, 冯承莲, 曹宇静, 等. 锌对淡水生物的毒性特征与水质基准的研究. *生态毒理学报*, 2011, 6(4): 367–382]
- Wu X, Gao M, Wang L, *et al.* The arsenic content in marketed seafood and associated health risks for the residents of Shandong, China. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2014, 102: 168–173
- Yan Z, Wang W, Zhou J, *et al.* Screening of high phytotoxicity priority pollutants and their ecological risk assessment in China's surface water. *Chemosphere*, 2015, 128: 28–35
- Yang HF, Liang CS, Dong SL, *et al.* Research for hygienic standard of inorganic arsenic in foods. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2003, 15(1): 27–31 [杨惠芬, 梁春穗, 董仕林, 等. 食品中无机砷限量卫生标准的研究. *中国食品卫生杂志*, 2003, 15(1): 27–31]
- Yang WL, Lai ZN, Wei TL, *et al.* The content of lead in the aquatic products in Qingyuan Basin of Beijing River. *Freshwater Fisheries*, 2007, 37(3): 67–69, 75 [杨婉玲, 赖子尼, 魏泰莉, 等. 北江清远段水产品中铅含量调查. *淡水渔业*, 2007, 37(3): 67–69, 75]
- Yu XX, Peng BC. Accumulative toxicity and effects on marrow cell micronucleus rate and sperm formation of CrCl<sub>3</sub>. *Journal of Hebei Medical University*, 1997, 18(3): 14–16 [余晓星, 彭宝成. 三氯化铬的蓄积毒性及其对骨髓细胞微核率和精子形成的影响. *河北医科大学学报*, 1997, 18(3): 14–16]
- Yu YJ, Fu YW, Sun P, *et al.* Screening analysis of characteristic pollutants in Songhua River in Jilin City. *Journal of Environmental Hygiene*, 2013, 3(3): 175–181, 185 [于云江, 付益伟, 孙朋, 等. 松花江吉林市江段水体特征污染物筛选研究. *环境卫生学杂志*, 2013, 3(3): 175–181, 185]
- Zhang JH, Ou Q. Situation and assessment of heavy metal contents in benthons in Pearl River estuary. *Marine Environmental Science*, 2005, 24(2): 50–52 [张敬怀, 欧强. 珠江口底栖生物重金属含量现状与评价. *海洋环境科学*, 2005, 24(2): 50–52]
- Zhang WD. Arsenic speciation and food safety in seafoods. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2007, 19(4): 345–350 [张文德. 海产品中砷的形态分析现状. *中国食品卫生杂志*, 2007, 19(4): 345–350]
- Zhang Y, Lu XQ, Liu HL, *et al.* Distribution characteristics and source identification of heavy metal in surface sediments of Bohai Bay near Tianjin. *Research of Environmental Sciences*, 2014, 27(6): 608–614 [张彦, 卢学强, 刘红磊, 等. 渤海湾天津段表层沉积物重金属分布特征及其来源解析. *环境科学研究*, 2014, 27(6): 608–614]
- Zhou DQ. The theories and cases of risk assessment on aquatic

- products safety. Qingdao: China Ocean University Press, 2013 [周德庆. 水产品安全风险评估. 青岛: 中国海洋大学出版社, 2013]
- Zhou SJ, Dun ZJ, Liang JH, *et al.* Risk ranking method for chemical and biological hazards in food based on semi-quantitative risk assessment. *Chinese Journal of Food Hygiene*, 2015, 27(5): 576–585 [周少君, 顿中军, 梁骏华, 等. 基于半定量风险评估的食品风险分级方法研究. *中国食品卫生杂志*, 2015, 27(5): 576–585]
- Zhou ZY, Fan YB, Wang MJ. Fuzzing mathematics method in the comprehensive assessment of food contamination. *Environmental Science*, 2000, 21(3): 22–26 [周泽义, 樊耀波, 王敏健. 食品污染综合评价的模糊数学方法. *环境科学*, 2000, 21(3): 22–26]
- Zuo P, Wang YP, Min FY, *et al.* Distribution characteristic of heavy metals in surface sediments and core sediments of the Shenzhen Bay in Guangdong Province. *China Acta Oceanologica Sinica*, 2009, 28(6): 53–60

(编辑 陈严)

## Hazard Analysis and Screening of the Prior Heavy Metals of Priority Pollution in Fish in the Yellow Sea and the Bohai Sea

HAN Dandan<sup>1,2</sup>, ZHAO Feng<sup>1</sup>, MU Weili<sup>3</sup>, ZHANG Daoxu<sup>3</sup>, ZHOU Deqing<sup>1①</sup>

(1. Laboratory for Marine Drugs and Bioproducts, Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Yellow Sea Fisheries Research Institute, Chinese Academy of Fishery Sciences, Qingdao 266071; 2. College of Food Sciences and Technology, Shanghai Ocean University, Shanghai 201306; 3. Penglai Jinglu Fishery Co., Ltd., Yantai 265600)

**Abstract** With increasingly serious heavy metal pollution in the aquatic environment, the pollution status in fish has affected the food safety and attracted much attention. It is urgent to know the condition of heavy metal pollution in fish in the Yellow Sea and the Bohai Sea. It is also crucial to know different metal pollutions in one fish species and to identify the prominent type of heavy metal. Here we analyzed the status of heavy metal pollution in fish in the Yellow Sea and the Bohai Sea based on the literature and historical data, and compared the different situations to determine the prior pollution. We analyzed the exceeding standard rate, the detection rate and the limitation standard of heavy metals and found the priority order as Cr, As, Cd, Pb and Hg. The prior pollution in fish in the Yellow Sea and the Bohai Sea were determined using the comprehensive evaluation method with the bio concentration factors (BCF), the toxicity effect, the pollution index and the exceeding standard rate. The score of Cd was the highest, and the order of scores was Cd > Hg > As\* > Cr > Pb. Different fish species had different prior heavy metal pollution. Cd was the prior heavy metal in *Cynoglossus robustus* and *Scomberomorus niphonius*, and As\* was the prior one in *Synechogobius hasta*. Then we conducted the validation experiment with samples including *C. robustus*, *Mugil cephalus*, *Synechogobius hasta*, *S. niphonius* and *Larimichthys polyactis* that were collected from eight coastal cities along the Yellow Sea and the Bohai Sea. The results of the validation experiments were consistent with those of the screening method, therefore the screening method should be reliable.

**Key words** Yellow Sea and Bohai Sea; Priority pollution of heavy metals; Screening; Comprehensive assessment

① Corresponding author: ZHOU Deqing, E-mail: zhoudq@ysfri.ac.cn