江苏省典型稻虾养殖环境和产品重金属分布及 风险评价

任 娣 ^{1,2}, 徐志华 ^{1,2}, 刘崇万 ^{1,2}, 胡 月 ^{1,2}, 黄 姗 ^{1,2}, 王 鹭 ^{1,2}, 朱晓华 ^{1,2*}

(1. 江苏省淡水水产研究所,南京 210017; 2. 江苏省水产质量检测中心,南京 210017)

摘 要:目的 探讨江苏地区稻田养殖小龙虾养殖环境潜在生态风险和小龙虾中重金属含量分布情况及食用 安全性。方法 2022年3—6月期间对江苏省稻虾养殖示范基地9个养殖区水质、沉积物和稻虾样品进行采集,并进行重金属含量分析。采用水质综合污染指数,对稻虾养殖环境水质状况进行生态风险评价;采用潜在 生态风险指数法评价稻虾养殖环境表层沉积物中重金属潜在风险;采用危害商数法来评价稻虾污染物对人体 健康产生风险。结果 部分采样点水质中铜元素有超过 GB 11607—1989《渔业水质标准》现象,其余4种元素均在限量值范围内。沉积物生态风险等级为低风险,镉是生态风险最大的重金属元素。部分稻虾肝胰腺砷元素有超标现象,其他4种元素均在GB2762—2017《食品安全国家标准食品污染物限量》限量值范围内,虾肉、肝胰腺中5种元素危害商数值和危害商数总和值均小于1。结论 稻虾养殖区水质整体未受到污染影响,表层沉积物生态风险较低,长期摄入稻虾虾肉、肝胰腺对人体健康风险不明显,安全性较好。

关键词: 小龙虾; 重金属; 稻田养殖; 水质综合污染指数; 重金属潜在生态风险; 健康风险评价

Distribution and risk assessment of heavy metals in typical rice-shrimp breeding environment and products in Jiangsu Province

REN Di^{1,2}, XU Zhi-Hua^{1,2}, LIU Cong-Wan^{1,2}, HU Yue^{1,2}, HUANG Shan^{1,2}, WANG Lu^{1,2}, ZHU Xiao-Hua^{1,2*}

- (1. Freshwater Fishery Research Institute of Jiangsu Province, Nanjing 210017, China; 2. Aquatic Products Analysis and Testing Center of Jiangsu Province, Nanjing 210017, China)
- **ABSTRACT: Objective** To explore the potential ecological risks of typical *Procambarus clarkii* breeding environment in Jiangsu Province, the distribution of heavy metals in *Procambarus clarkii* and its food safety. **Methods** The concentration of heavy metals in the water, sediment and rice-shrimps which were collected from 9 cultivation areas of rice shrimp cultivation demonstration base in Jiangsu Province from March to June in 2020 were analyzed. Comprehensive water quality pollution index was used to evaluate the ecological risk of rice-shrimp culture environment water quality. The potential ecological risk index method was used to evaluate the potential risk of heavy metals in surface sediments of rice-shrimp culture environment. The hazard quotient method was used to

基金项目: 蓝色粮仓科技创新重点专项(2020YFD0900300)

Fund: Supported by the Blue Granary Science and Technology Innovation Key Project (2020YFD0900300)

^{*}通信作者: 朱晓华, 硕士, 研究员, 主要研究方向为水产品质量安全。E-mail: xhz824@sina.com

^{*}Corresponding author: ZHU Xiao-Hua, Master, Professor, Freshwater Fishery Research Institute of Jiangsu Province, No.90, Nanhu East Road, Jianye District, Nanjing 210017, China. E-mail: xhz824@sina.com

evaluate the risk of rice-shrimp pollutants to human health. **Results** The concentration of Cu in the water collected from some sampling points exceeded the GB 11607—1989 *Fishery water quality standard*, and the other four elements were within the limit value. The ecological risk level of heavy metals in the sediments was low. The highest potential ecological risk index of heavy metals was Cd. The concentration of the other four heavy metals was within the limit value of GB 2762—2017 *National food safety standard-Food pollutant limit* except the concentration of As in the liver and pancreas of some rice-shrimp. The hazard quotient and the sum of the hazard quotient of the 5 kinds of heavy metals in shrimp were less than 1. **Conclusion** The water of the rice-shrimp breeding area is not affected by heavy metals. The ecological risk of heavy metal in sediment is low. The long-term intake of rice-shrimp meat and hepatopancreas has no obvious risk to human health, and it has good safety.

KEY WORDS: *Procambarus clarkii*; heavy metals; rice-field culture; comprehensive pollution index in water; potential ecological risks of heavy metals; health risk assessment

0 引 言

小龙虾(Procambarus clarkii), 学名克氏原螯虾, 因其含有大量优质蛋白和多种矿物质、氨基酸等, 且肉质软嫩, 风味鲜美而受到越来越多的消费者的青睐。然而, 近些年我国经济发展迅速, 人们生产、生活强度加大, 环境污染问题日益凸显, 其中重金属污染已成为最重要的环境问题之一^[1-2]。大量重金属污染物进入河流、养殖池塘等, 水体、沉积物中的重金属通过食物链传递, 最终富集在水生生物体内, 严重危害人类的身体健康^[3-5]。

国内外很有多关于小龙虾对重金属富集特性的研究。研究表明小龙虾对多种重金属元素的富集能力较强,在小龙虾的不同组织中富集程度不同,甚至可能高于周围环境数倍^[6-8]。张文等^[9]在对江苏地区小龙虾中镉的膳食暴露及风险评估的研究表明,江苏地区有部分小龙虾样品存在镉含量超标现象。王华全等^[10]研究了湖北淡水小龙虾体内的重金属含量,发现尽管水体中重金属含量低至几乎检测不出,沉积物的重金属含量符合标准,但龙虾体内重金属仍有部分超标。研究结果表明,小龙虾的不同部位对不同重金属的富集能力存在差异,且小龙虾受到铜、镉不同程度的污染,肌肉的残留量低于鳃和肝胰腺等^[11]。

目前稻渔综合种养模式因其良好的经济效益和生态效益,在全国得到迅速地推广与发展,成为助力实施乡村振兴战略和产业精准扶贫的重要抓手^[12-13]。随着稻虾综合种养规模和产量的增加,越来越多的人们开始关注稻虾食用安全性的问题^[14-15]。近年来,我国在小龙虾重金属富集的诸多方面取得了一定的进展,但大多研究池塘养殖模式下或者市场销售小龙虾重金属富集情况^[16-17],对稻田综合种养模式下养殖的小龙虾及其养殖环境中水体、底泥沉积物中的重金属含量测定的研究相对较少,因此本研究以江苏省稻虾养殖示范基地为研究对象,根据稻虾生长周期,每周采集江苏省稻虾养殖示范基地 9 个养殖区水体、沉积物和稻虾样品。测定铅(Pb)、镉(Cd)、砷(As)、汞(Hg)、铜

(Cu)共5种重金属含量,分析养殖环境中水体、沉积物的污染特征并进行生态风险评价,同时对稻虾样品进行食用健康风险评价,以期为稻虾综合种养模式的发展提供相关数据支撑,为稻虾产品的消费提供安全指导。

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

硝酸、过氧化氢(优级纯,国药集团化学试剂有限公司); Pb、Cd、As、Hg、Cu标准溶液(1000 mg/L,中国计量科学院); 水系沉积物成分分析标准物质(中国地质科学院物理地球化学勘察研究所,批号: GBW07377 GSD-26); 大虾成分分析标准物质(中国地质科学院物理地球化学勘察研究所,批号: GBW10050 GSB-28)。

1.2 仪器与设备

WB-PM 采水器(北京普雷德仪器设备有限公司); ASC 柱状采泥器(北京普雷德仪器设备有限公司); CEM Mars6 微波消解仪(美国 CEM 公司); EHD-24 电热板(北京东航科仪仪器有限公司); TE612-L 电子天平(0.0001 g, 德国 Sartorius 公司); Milli-Q Elix + IQ7000 超纯水仪(美国 Millipore公司); ELAN DRC-e型电感耦合等离子质谱仪(美国 Perkin Elmer 公司)。

1.3 实验方法

1.3.1 样品采集

根据稻虾养殖周期,于 2021年3月至6月期间每月在淮安市、徐州市、宿迁市稻虾养殖示范基地的9个养殖区进行水样、沉积物和稻虾产品取样,采样点如图1所示。水样经过0.45 µm 微孔滤膜过滤后加硝酸酸化至pH<2并采用低温冷藏方式保存,沉积物采用柱状采泥器每个采样点采集2~4 kg,四分法缩分留样不少于500g,风干研磨过100目筛后备用。从稻虾养殖区采集稻虾样品,虾的最少样本量和检测量皆符合GB/T30891—2014《水产品抽样规范》中的要求。用纯净水冲洗虾体,然后用不锈钢剪刀将

虾体的腹部与头胸部分离开,剪开腹部甲壳,用不锈钢钥匙刮取肌肉,剪开并去除头胸部坚硬的外壳,用钥匙小心挑出肝胰脏,用镊子撕下两侧的腮,最终得到克氏原螯虾肌肉、肝胰脏、腮、壳四部分组织样品。每个采样点克氏原螯虾的同一组织合并为一组混匀,分别装袋冷冻保存,待检测。

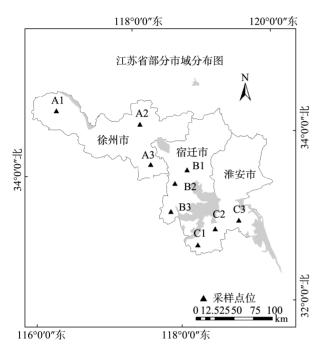


图 1 采样点分布示意图

Fig.1 Distribution diagram of sampling points

1.3.2 样品测定

水样经过滤酸化后直接上机,称取沉积物样品 0.2000 g 或生物样品 0.5000 g,底泥样品加入盐酸、硝酸混合溶液,生物样品加入硝酸、30%过氧化氢,经微波消解后,采用电感耦合等离子质谱仪测定各元素浓度,仪器条件参照谭秀慧等^[18]方法。样品分析过程中,采用严格质量控制,校准曲线的相关系数达到 0.995 以上;平行样误差低于 5%,每批样品测定 2 个基体加标,测定的加标回收率介于93.5%~109.8%之间;每分析10个样品,测定1次校准曲线中间质量浓度点,其测定结果与实际质量浓度值相对偏差均小于等于 10%;每 10 个样品添加 1 个质控样,保证其测定值在限定值范围内。

1.3.3 数据处理

原始数据利用 Excel 2010 进行整理,采用 SPSS 25.0 软件进行单因素方差分析。显著性水平(P)为 0.05。

1.4 评价方法

1.4.1 水质重金属

使用水质综合污染指数法对养殖环境水质样品 Cu、Pb、Cd、Hg 和 As 的含量进行污染水平综合评价^[19],如公式(1):

$$S_{i} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} \frac{C_{i}}{C_{io}}$$
 (1)

式中, C_i 为第i种重金属的实测浓度; C_{io} 为重金属评价标准 (本研究采用 GB 11607—1989《渔业水质标准》); n 为金属 i参与分析的样品总数; S_i 为该采样点重金属综合污染指数, 具体渔业水质重金属污染水平分级情况见表 1。

表 1 渔业水质状重金属污染水平分级 Table 1 Classification of heavy metal pollution level in fishery

water quality

等级	水质综合污染指数	污染效应
1	S _i <1	没有影响
2	$1 \le S_i \le 2$	轻微影响
3	$2 \le S_i \le 3$	中等影响
4	$3 \le S_i \le 5$	较强影响
5	<i>S</i> _i >5	严重影响

1.4.2 沉积物重金属

相比于单因子污染指数法,潜在生态危害指数法不 仅考虑沉积物重金属含量,而且综合考虑了不同元素之间 协同作用、毒性水平、污染浓度以及环境对重金属污染敏 感性等多方面因素^[20],因此本研究采用潜在生态风险指数 法评价沉积物中重金属潜在风险,如公式(2):

$$E_{\rm r}^{\rm i} = T_{\rm r}^{\rm i} \times C_{\rm f}^{\rm i} = T_{\rm r}^{\rm i} \times \frac{C^{\rm i}}{C^{\rm i}} \tag{2}$$

式中, E_r^i 为金属 i 的潜在生态危害系数; T_r^i 为重金属毒性响应系数, $T_r(Hg)=40$; $T_r(Cd)=30$; $T_r(As)=10$; $T_r(Pb)=T_r(Cu)=5$; C_f^i 为金属 i 的污染系数; C^i 为第 i 种重金属的实测浓度; C_n^i 为金属 i 的研究区背景评价参考值,该研究采用江苏省土壤重金属背景值,如公式(3)。

$$E_{\rm RI} = \sum_{1}^{\rm n} E_{\rm r}^{\rm i} \tag{3}$$

式中, E_{RI} 为多种重金属的综合潜在生态风险指数(RI); E_r^i 为金属 i 的潜在生态危害系数。单个金属潜在生态危害指数、多元素综合潜在生态危害指数具体评价标准见表 2。

表 2 潜在生态危害指数评价标准 Table 2 Potential ecological harm index evaluation criteria

$E_{ m r}^{~ m i}$	单因子污染物生态 危害程度	$E_{ m RI}$	污染程度
<40	低	<150	低
40~80	中等	150~300	中等
80~160	较重	300~600	重
160~320	重	≥600	严重
≥320	严重		

1.4.3 重金属对人体潜在健康风险评价

采用危害商数法(target hazard quotients, THQ)来评价污染物对人体健康产生风险^[21], TTHQ 为各种重金属的危害商数的总和。当危害商数小于1时表明暴露人群有明显的健康风险; 当危害商数大于等于1时表明存在食用风险。评价重金属的摄入对人体健康造成的风险在评价水产品的危害商数的同时确定饮食摄入量也是必要的^[22], 世界卫生组织针对重金属制定了人类暂定每周允许摄入量(provisional tolerable weekly intake, PTWI)^[23], 各元素PTWI 参考值见表 3。危害商数法和重金属每周评估摄入量(estimated weekly intake, EWI)计算如公式(4)~(5)下:

$$THQ = \frac{EF \times ED \times FIR \times c \times 10^{-3}}{RFD \times WAB \times TA}$$
 (4)

$$EWI = \frac{c \times FIR \times 7}{WAB}$$
 (5)

式中, EF 为暴露频率(d), 取 365 d/年; ED 为暴露年限(年), 取 70年; FIR 为人体对食物的摄取率,根据数据统计,甲壳类的摄取量为 5.42 g/d; c 为产品中重金属含量(mg/kg); RFD 为单日服用参考剂量[mg/(kg·d)],各元素 RFD 参考值见表 $3^{[24]}$; WAB 为人类的平均体重(kg),取 60 kg; TA 为非致癌源的平均暴露时间(d),取 365 d/年×ED。

表 3 重金属污染评价参考限量
Table 3 Reference limits of evaluation of heavy metal pollution

参考值	Pb	Cd	As	Hg	Cu
$RFD/[mg/(kg \cdot d)]$	0.004	0.001	0.0003	0.0003	0.04
PTWI/[mg/(kg·hw)]	0.025	0.007	0.015	0.005	3.5

2 结果与分析

2.1 典型稻虾综合种养区水体中重金属分布特征

江苏省部分稻虾综合种养区各采样点水样中重金属含量见表 4。从表 4 可以看出江苏部分稻虾综合种养区水样中Pb、Cd、As、Hg、Cu平均质量浓度范围分别为 0.79~1.98、0.14~0.39、2.99~4.71、0.04~0.11、4.34~8.12 μg/L。Pb、Cd、As、Hg 4 种元素均在限量值范围内。B3 采样点水样中Cd浓度显著高于除C1、C3 采样点外其他各采样点(P<0.05)。除Cd外,其余重金属在各取样点间无显著性差异。除采样点 A1、A2,其余 7 个采样点 Cu浓度均有超过 GB 11607—1989 规定的现象。水质综合污染指数评价结果表明,除A2 采样点各采样区综合污染指数均出现大于1 现象,表明该养殖区水质部分时段受到轻微污染影响。水质综合污染指数平均值来看,B3 采样点受到的污染影响最大。

江苏省部分稻虾综合种养区不同采样时间水样中重金属含量见表 5。从表 5 可以看出江苏省部分稻虾综合种养区水样中 Pb、Cd、As、Hg、Cu 平均质量浓度范围分别为 1.38~1.64、0.20~0.31、3.41~3.78、0.06~0.10、3.22~11.56 µg/L。除 Cu 外,其余重金属在采样时间上无显著性差异。6 月水样中 Cu 浓度显著高于 3、4、5 月(P<0.05)。6 月水样中重金属平均浓度超过 GB 11607—1989,3、4、5 月均未出现超过现象。水质综合污染指数评价结果表明,除 6 月各采样区综合污染指数指数平均值大于 1,表明 6 月各养殖区水质受到轻微污染影响。3、4、5 月水质综合污染指数平均值均小于 1,表明各养殖区水质并未受到污染。

表 4 各采样点水样中重金属平均浓度(n=4)
Table 4 Average concentration of heavy metals in water samples at each sampling point (n=4)

采样点		质	综合污染指	综合污染平			
木 件点	Pb	Cd	As	Hg	Cu	数范围	均值
A1	1.84±0.34	0.16±0.11 ^{bc}	3.29±1.93	0.10±0.05	4.50±3.79	0.32~1.40	0.78
A2	1.41±1.22	$0.28{\pm}0.15^{bc}$	$3.59{\pm}1.66$	0.05 ± 0.03	4.34±1.59	0.54~0.83	0.69
A3	1.98 ± 1.17	$0.14{\pm}0.14^{c}$	2.99 ± 0.77	0.06 ± 0.06	8.12±5.63	0.49~2.00	1.06
B1	0.79 ± 0.21	$0.14{\pm}0.17^{c}$	$3.86{\pm}0.82$	0.11 ± 0.04	6.75±4.24	0.68~1.64	1.00
B2	1.64 ± 1.02	$0.25{\pm}0.11^{bc}$	$3.12{\pm}1.80$	0.04 ± 0.06	6.24 ± 5.52	0.33~1.71	0.85
В3	1.15±0.91	$0.39{\pm}0.06^a$	$3.33{\pm}1.57$	0.09 ± 0.06	7.73±6.25	0.52~2.08	1.12
C1	1.93 ± 0.27	$0.37{\pm}0.16^{ab}$	4.27 ± 0.33	0.09 ± 0.02	5.76 ± 5.99	0.36~1.87	0.94
C2	$1.23{\pm}0.85$	$0.35{\pm}0.15^{bc}$	$3.18{\pm}1.98$	0.05 ± 0.02	7.00 ± 5.77	0.47~1.74	0.96
C3	1.66 ± 0.33	$0.34{\pm}0.11^{abc}$	4.71 ± 0.48	0.09 ± 0.04	4.42±7.06	0.40~1.84	0.82
GB 11607—1989	50	5	50	0.5	10		

注: A1、A2、A3 为徐州市 3个采样点; B1、B2、B3 为宿迁市 3个采样点; C1、C2、C3 为淮安市 3个采样点; 同列不同字母表示有显著性差异, 下同。

2.2 典型稻虾综合种养区沉积物中重金属分布特征

各采样点沉积物重金属平均含量情况见表 6。结果表明相对于 GB 15618—2018《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》风险筛选值,各采样点 5 种重金属元素含量均未超标。相对于全国土壤背景值,A3、B1、B2、B3 4 个采样点 Pb 元素含量超标,分别为 1.05、1.14、1.08、1.04 倍,其他 4 种重金属元素均未超标。相对于江苏省土壤背景值(表土),Pb、Cd、As、Cu均出现超标现象。除 As、Hg 外,其他 3 个重金属元素各采样点间的差异显著。其中 B1 采样点 Pb 含量明显高于 A1、A2、C1、C2、C3;其中 B1 采样点 Cu 含量明显高于 C1、C2、C3;其中 B1采样点 Cu 含量明显高于 C1、C2、C3;

江苏省部分稻虾综合种养区沉积物中 5 种重金属的单项潜在生态风险指数和潜在生态风险综合指数见表 7。江苏省部分稻虾综合种养区沉积物中潜在生态风险综合指数(RI)为 35.68~63.93, 平均为 51.41, 生态风险等级为低。按照采样城市来分,3 个采样城市沉积物潜在生态风险综合指数(RI)比较,宿迁市(61.38)>徐州市(55.60)>淮安市(37.24)。 Cd 的单项污染物生态风险指数 $E_{\rm r}^{\rm i}$ 为 13.46~36.06, 均值为 25.42, 对区域综合潜在生态风险指数 RI 的贡献率最高,为 49.4%,是可能造成重金属污染潜在生态风险最主要因子,是生态风险最大的元素。所测 5 种重金属的单项潜在生态风险指数生态风险均值排列顺序为 Cd>As>Pb>Cu>Hg。

表 5 不同采样时间水样中重金属平均浓度(n=9)
Table 5 Average concentration of heavy metals in water samples at different sampling time (n=9)

采样时间			g 英国	$S_{\rm i}$ 平均值			
本件时间	Pb	Cd	As	Hg	Cu	S _i 范围	
3月	1.48±0.67	0.29±0.17	3.45±1.10	0.06±0.03	4.60±2.46 ^b	0.33~1.10	0.72
4月	1.64±0.72	0.20 ± 0.11	3.41±1.55	0.08 ± 0.05	3.22 ± 2.22^{b}	0.36~0.88	0.61
5 月	1.38±0.88	0.31±0.14	3.78±1.28	0.06 ± 0.05	$3.84{\pm}2.51^{b}$	0.32~1.09	0.65
6月	1.57±1.04	0.25±0.18	3.66±1.66	0.10 ± 0.05	11.56±5.15 ^a	0.79~2.08	1.67

表 6 沉积物中重金属平均浓度(n=4)
Table 6 Average concentration of heavy metals in sediments (n=4)

采样点 	浓度/(mg/kg)								
本 什点	Pb	Cd	As	Hg	Cu				
Al	32.57±6.71 ^{bc}	0.16±0.05 ^a	7.69±1.63	0.03±0.01	29.68±13.73 ^{abc}				
A2	26.55±10.65°	0.11 ± 0.03^{b}	8.06±1.61	0.02 ± 0.01	$30.90{\pm}17.35^{ab}$				
A3	$36.84{\pm}1.59^{ab}$	$0.14{\pm}0.04^{ab}$	7.17±2.06	0.03 ± 0.01	30.38 ± 6.53^{abc}				
B1	39.84±2.68 ^a	$0.15{\pm}0.02^{ab}$	10.02±7.44	0.04 ± 0.01	31.15±2.75 ^a				
B2	$37.95{\pm}1.14^{ab}$	$0.13{\pm}0.02^{ab}$	12.75±5.94	0.03 ± 0.01	$28.85{\pm}3.94^{abc}$				
В3	$36.45{\pm}4.47^{ab}$	$0.13{\pm}0.01^{ab}$	10.7±6.97	0.04 ± 0.01	29.63 ± 2.09^{abc}				
Cl	$30.31{\pm}1.34^{bc}$	0.06±0.01°	10.34±3.78	0.04 ± 0.02	$16.03{\pm}4.62^{\rm d}$				
C2	30.11 ± 1.46^{bc}	0.06 ± 0.01^{c}	8.02±2.3	0.03 ± 0.01	17.2±2.09 ^{cd}				
C3	30.76±4.21 ^{bc}	$0.06 \pm 0.02^{\circ}$	7.84±3.44	0.03 ± 0.01	17.6 ± 3.71^{bcd}				
江苏省土壤背景值(表土)[25]	26.2	0.13	10	0.29	22.3				
全国土壤背景值[26]	35	0.2	15	0.15	35				
GB 15618—2018 中土壤环境质量风险筛选值	240	0.8	20	1.0	100				

	表 7	沉积物中重金属污染潜在风险评价
Table 7	Potential ri	sk assessment of heavy metal pollution in sediments

采样点 $E_{ m r}^{ m i}$ Pb Cd As Hg Cu	RI	综合潜在生态	
Ph Cd As Hø Cu		[X] K(
		风险指数	
A1 6.21 36.06 7.68 4.16 6.65	60.76	低	
A2 5.07 24.67 8.05 3.37 6.92	48.08	低	
A3 7.03 32.87 7.16 4.11 6.81	57.98	低	
B1 7.60 34.28 10.02 5.05 6.98	63.93	低	
B2 7.24 29.49 12.74 4.63 6.46	60.56	低	
B3 6.95 29.71 10.70 5.65 6.64	59.65	低	
C1 5.78 13.73 10.34 5.64 3.59	39.08	低	
C2 5.74 14.55 8.02 4.79 3.85	36.95	低	
C3 5.87 13.46 7.84 4.57 3.94	35.68	低	
平均值 6.39 25.42 9.17 4.66 5.76	51.41	低	

2.3 稻虾产品健康风险评价

2.3.1 稻虾中各重金属分布情况

稻虾产品虾肉、肝胰腺、鳃丝、壳中 5 种重金属的分布情况见表 8。从表 8 可以看出, Cu 最高, As 次之, Hg、Cd、Pb 最低。稻虾累积重金属 Cu、As 能力明显高于累积 Cd、Pb、Cr 的能力。各元素除 As 外, 其他 4 种元素均在 GB 2762—2017 限量值范围内。同一元素在不同部位的分布也有比较显著的差异, Pb 在鳃丝中的含量最高, 肝胰腺、壳次之, 虾肉中最低。肝胰腺中 Cd 的含量要明显高于其他部位。As 在各部位蓄积能力为肝胰腺>壳>腮丝; Cu 在各部位蓄积能力为腮丝>肝胰腺>壳>肥丝; Cu 在各部位蓄积能力为腮丝>肝胰腺>壳>断肉。

2.3.2 稻虾中各重金属潜在健康风险评价

江苏省部分稻虾综合种养区稻虾每周评估摄入量和通过摄入稻虾虾肉和肝胰腺暴露重金属的THQ值如表9所示。

通过表 3 和表 9 可知,本研究抽取的稻虾产品虾肉和肝胰腺中重金属的 EWI 均远低于世界卫生组织所制定的人类PTWI。在稻虾虾肉中,Hg 的 THQ 值最高。在稻虾肝胰腺中,As 的 THQ 值最高,其中以徐州市稻虾肝胰腺 THQ 值最高为 0.231,徐州稻虾肝胰腺的复合重金属 TTHQ 同样最高。3个地区稻虾虾肉 TTHQ 高低顺序依次为宿迁市>徐州市>淮安市,平均 TTHQ 为 0.097,远小于 1,3 个地区稻虾肝胰腺TTHQ高低顺序依次为徐州市>宿迁市>淮安市,平均 TTHQ为 0.235。上述研究数据表明,长期摄入这些稻虾虾肉和肝胰腺暴露重金属的健康风险展小,但稻虾肝胰腺暴露重金属的健康风险要远远大于稻虾虾肉,且本次监测稻虾肝胰腺中 As 含量平均值超出 GB 2762—2017 限量要求,因此要减少稻虾肝胰腺的摄入,但由于在 GB 2762—2017 中仅对无机砷作出限值,因此还需对稻虾各部位中 As 的形态进一步测定从而确定其是否满足限量要求。

表 8 稻虾各部位重金属含量分布(n=36)
Table 8 Distribution of heavy metals in different parts of rice-shrimp (n=36)

部位	Pb	Cd	As	Hg	Cu
虾肉	0.005	0.007	0.249	0.083	2.51
肝胰腺	0.032	0.094	0.679	0.037	6.76
腮丝	0.058	0.010	0.543	0.029	10.80
壳	0.035	0.011	0.447	0.031	4.99
GB 2762—2017	0.5	0.5	0.5(无机砷)	0.5(甲基汞)	-

	表 9	稻虾每周评估摄入量和危害商数
Table 9	Weekly asses	sment of intake and hazard quotient of rice-shrimp

采样点	如在	部位 ————————————————————————————————————				THQ					TTHO		
	н Ь <u>Л√</u>	Pb	Cd	As	Hg	Cu	•	Pb	Cd	As	Hg	Cu	TTHQ
公川主	虾肉	0.003	0.0032	0.158	0.061	1.76	•	0.00009	0.0005	0.075	0.0175	0.0063	0.100
徐州市	肝胰腺	0.018	0.0594	0.484	0.027	6.10		0.00063	0.0085	0.231	0.0076	0.0218	0.269
会で主	虾肉	0.004	0.0051	0.192	0.040	1.37		0.00014	0.0007	0.091	0.0116	0.0049	0.109
宿迁市	肝胰腺	0.009	0.0594	0.451	0.018	3.26		0.00034	0.0085	0.215	0.0052	0.0116	0.240
38-13-3-	虾肉	0.004	0.0057	0.122	0.056	1.63		0.00014	0.0008	0.058	0.0159	0.0058	0.081
淮安市	肝胰腺	0.006	0.0594	0.354	0.025	3.47		0.00020	0.0085	0.169	0.0070	0.0124	0.197

3 讨论与结论

随着稻渔综合种养模式的不断推广,江苏省稻虾共作面积在持续扩大,稻虾养殖对水体环境影响受到农业和环境监管部门的重视。本研究表明江苏省部分地区稻虾综合种养区水质监测结果表明部分采样点 Cu 浓度有超过 GB 11607—1989 现象,其余 4 种元素均在限量值范围内。水质综合污染指数评价结果表明该养殖区水质部分时段受到轻微污染影响,整体来说稻虾综合种养区水体中重金属含量较低,水质并未受到重金属明显污染。这与潜江市稻虾共作模式下小龙虾养殖对水体环境的影响研究中结果一致^[27]。

水产养殖过程中容易受到外来重金属污染源的排入造成的污染和养殖过程中饲料的投放、渔药的施用等养殖投入所可能造成的重金属污染^[28]。本研究对象为稻虾综合种养区示范基地,典型稻田养殖,受附近工矿、化工厂等高污染企业影响的可能性比较低,因此小龙虾养殖过程中的重金属污染主要来自于养殖过程中饲料和渔药投放所带入的重金属污染,且通常以 Cu 和 Zn 为主^[29]。本研究发现,小龙虾养殖水体中 Cu 在部分时段有超标现象,可见水质存在养殖投入带来的潜在重金属污染风险。因此应当进一步加强饲料和渔药等由养殖投入带入的重金属污染源的监管力度,实时监测稻虾综合种养区养殖排入水体重金属含量,确保稻虾生长环境一直处于重金属低污染风险水平。

本研究结果表明相对于 GB15618—2018《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》风险筛选值各采样点 5 种重金属元素含量均未超标。稻虾综合种养区沉积物中潜在生态风险指数为 35.68~63.93, 平均为 51.41, 生态风险等级为低风险。所测 5 种重金属的单项潜在生态风险指数生态风险均值排列顺序为 Cd>As>Pb>Cu>Hg。Cd对养殖区综合潜在生态风险指数的贡献率最高,是生态风险最大的元素。张帆等[30]发现稻鸭综合种养系统中 Cd 的主要来源为磷肥和饲料。稻虾综合种养较少使用农药、化肥等[31],但会投喂一定量的饲料,因此投喂饲料可能会导致稻虾综合

种养稻田土壤的部分金属元素含量高的主要原因。另外通过显著性差异分析表明不同采样城市间部分元素含量差异特征明显不同。宿迁市、徐州市稻虾综合种养区表层沉积物 Cd 明显高于淮安市;徐州市稻虾综合种养区表层沉积物 Cu 元素含量明显高于淮安市。骆仁军等[32]研究表明底泥中各种元素在8个产地间均具有较大差异,不同产地中华绒螯蟹生境中底泥的元素含量、组成具有明显产地差异特征。因此可以进一步深入研究稻虾产地沉积物中主成分元素差异性和相关性,从而筛选出区别产地差异的关键元素,包括很多痕量元素,从而用于稻虾样品的产地溯源。

同一元素在稻虾不同部位的分布有比较显著的差异, Pb 在鳃丝中的含量最高, 肝胰腺、壳次之, 虾肉中最低。 肝胰腺中 Cd 的含量要明显高于其他部位。As 在各部位蓄 积能力为肝胰腺>腮丝>壳>虾肉; Hg 在各部位蓄积能力为 虾肉>肝胰腺>壳>腮丝 Cu 在各部位蓄积能力为腮丝>肝胰 腺>壳>虾肉。虾肉、肝胰腺中5种元素 THO 值均小于1. 表 明长期摄入这些稻虾虾肉和肝胰腺暴露重金属的健康风险 很小,食用安全性较好。部分稻虾肝胰腺砷元素有超标现 象, 其他 4 种元素均在 GB 2762—2017 限量值范围内。谢 文平等[33]对珠江三角洲4种淡水养殖鱼类重金属进行测定, 研究结果表明水产品中 Cr、As 残留可能存在一定的食用 安全隐患。对全国 12 省 217 个小龙虾样品中重金属含量监 测结果表明小龙虾体内重金属对人体健康的威助较低, 但 是对于长江中下游地区消费者而言, 小龙虾中重金属仍可 能存在较高的暴露风险,风险主要来自于砷元素[34]。这与 本研究结果一致, 江苏地区大多城市喜食小龙虾, 尤其夏 季消费高蜂期一次性食用小龙虾量较大。稻虾肝胰腺的复 合重金属 TTHQ 远远大于虾肉, 在稻虾肝胰腺中, 砷的 THQ 值最高, 因此在食用小龙虾时要减少肝胰腺的摄入。 但由于本研究仅对总砷进行测定,在 GB 2762—2017 中对 无机砷作出限值, 但对总砷含量未标明限量值, 因此还需 对稻虾各部位中 As 的形态进一步测定从而确定其是否满 足限量要求及其食用安全性。

参考文献

- [1] 施宸皓,王云燕,柴立元,等.洞庭湖湿地周围表层土壤重金属污染及 其人体健康风险评价[J].中国有色金属学报,2020,30(1):12.
 - SHI CH, WANG YY, CHAI LY, *et al.* Assessment of heavy metal and human health risk in surface soils around Dongting Lake wetland, China [J]. Chin J Nonf Met, 2020, 30(1): 12.
- [2] 栾约生,张为,石纲,等. 湖北鄂州城市湖泊底泥重金属空间分布特征 与污染评价[J]. 长江科学院院报,2020,37(1):30-36.
 - LUAN YS, ZHANG W, SHI G, *et al.* Spatial distribution characteristics and pollution evaluation of heavy metals in the sediment of urban lakes in Ezhou, Hubei [J]. J Yangtze River Acad Sci, 2020, 37(1): 30–36.
- [3] 吴红岩, 赵金良, 唐首杰, 等. 华东地区鳜肌肉重金属含量现状与风险分析[J]. 生态毒理学报, 2020, 15(2): 11.
 - WU HY, ZHAO JL, TANG SJ, et al. Current situation and risk analysis of heavy metal content in *Siniperca chuatsi* muscle in East China [J]. J Ecotoxicol, 2020, 15(2): 11.
- [4] WUANA R, OGBODO C, ITODO AU, et al. Ecological and human health risk assessment of toxic metals in water, sediment and fish from lower Usuma Dam, Abuja, Nigeria [J]. J Earth Sci Environ Prot, 2020, 8(5): 25.
- [5] 李悦昭,陈海洋,孙文超."河-湖"沉积物重金属环境特征及来源解析 [J]. 环境科学, 2020, 41(6): 7.
 - LI YZ, CHEN HY, SUN WC. Environmental characteristics and source analysis of heavy metals in "river lake" sediments [J]. Environ Sci, 2020, 41(6): 7.
- [6] ZHANG M, ZHU CC, WANG Y, et al. Advances in research of heavy metal enrichment in crayfish *Procambarus clarkii* [J]. J Nanchang Univ, 2016, 2: 88–95.
- [7] 张旭, 冉景丞, 杨卫诚, 等. 贵州草海小龙虾体内重金属富集与环境的 关系[J]. 福建农业学报, 2019, 34(2): 8.
 - ZHANG X, RAN JC, YANG WC, et al. Relationship between heavy metal concentration in crayfish Caohai of Guizhou and environment [J]. Fujian Agric J, 2019, 34(2): 8.
- [8] 魏唯,杨春艳,王紫薇,等.养殖环境对小龙虾体内的重金属水平及其分布的影响[J].现代农业科技,2020,(16):4.
 - WEI W, YANG CY, WANG ZW, et al. Effects of breeding environment on the level and distribution of heavy metals in crayfish [J]. Mod Agric Sci Technol, 2020, (16): 4.
- [9] 张文,吴光红,卢元玲,等. 江苏地区克氏原螯虾中镉的膳食暴露及风 险评估[J]. 食品科学, 2017, 38(23): 6.
 - ZHANG W, WU GH, LU YL, *et al.* Dietary exposure and risk assessment of cadmium in *Procambarus clarkii* in Jiangsu [J]. Food Sci, 2017, 38(23): 6.
- [10] 王华全, 沈伊亮. 湖北出口淡水小龙虾重金属污染监测与分析[J]. 湖 北农业科学, 2014, 53(9): 2140-2142.
 - WANG HQ, SHEN YL. Monitoring and analysis of heavy metal pollution of Hubei exported cawfish [J]. Hubei Agric Sci, 2014, 53(9): 2140–2142.
- [11] 张振燕, 张美琴, 吴瑛, 等. 重金属 Cd 与 Cu 在克氏原螯虾体内富集与释放规律[J]. 食品科学, 2014, (17): 5.
 - ZHANG ZY, ZHANG MQ, WU Y, et al. Biological accumulation and release of Cd and Cu in *Procambarus clarkii* [J]. Food Sci, 2014, (17): 5.
- [12] 谭淑豪, 刘青, 张清勇. 稻田综合种养土地利用的生态-经济效果-以湖 北省稻虾共作为例[J]. 自然资源学报, 2021, 36(12): 13. TAN SH, LIU Q, ZHANG QY. Study on the ecological-economic effects

- of rice-aquatic coculture land use pattern: The case of rice-crayfish coculture in Hubei Province [J]. J Nat Res, 2021, 36(12): 13.
- [13] 张显良. 大力发展稻渔综合种养 助推渔业转方式调结构[J]. 中国水产. 2017. (5): 3.
 - ZHANG XL. Vigorously develop the comprehensive planting and breeding of rice and fishery to promote the transformation of fishery mode and structure adjustment [J]. China Fish, 2017, (5): 3.
- [14] 何力,喻亚丽,甘金华,等.克氏原螯虾质量安全风险研究与分析[J]. 中国渔业质量与标准,2020,10(1):12.
 - HE L, YU YL, GAN JH, *et al.* Study and analysis on quality and safety risk of crayfish [J]. China Fish Qual Stand, 2020, 10(1): 12.
- [15] 卜媛媛, 何小燕, 李翱, 等. 稻虾综合种养模式下小龙虾的膳食风险讨论[J]. 食品安全导刊, 2022, (3): 130-132.
 - BU YY, HE XY, LI AO, *et al.* Discussion on dietary risk of crayfish under the mode of rice and shrimp integrated cultivation [J]. China Food Saf Magaz, 2022, (3): 130–132.
- [16] 杨娟, 王守林, 刘林飞, 等. 苏北某地区小龙虾重金属含量与养殖水体的相关性分析[J]. 职业与健康, 2014, (20): 3.
 - YANG J, WANG SL, LIU LF, *et al*. Analysis on correlation between heavy metal content of crayfish and aquaculture water in an area in North Jiangsu [J]. Occup Health, 2014, (20): 3.
- [17] 陈细香, 刘银铃, 陈秋月, 等. 泉州地区克氏原螯虾重金属含量测定及评价[J]. 安徽农业科学, 2015, 43(3): 3.
 - CHEN XX, LIU YL, CHEN QY, et al. Determination and assessment of the content of heavy metals in *Procambarus clarkii* girard in Quanzhou area [J]. Anhui Agric Sci, 2015, 43(3): 3.
- [18] 谭秀慧,朱晓华,杨洪生,等. 电感耦合等离子体质谱法测定水产品中 辂,铜,锌,砷,镉,铅的含量[J]. 理化检验,2018,54(1):82-85.
 - TAN XH, ZHU XH, YANG HS, *et al.* ICP-MS Determination of chromium, copper, zinc, arsenic, cadmium and lead in aquatic products [J]. Phys Chem Inspect, 2018, 54(1): 82–85.
- [19] 宁阳明, 尹发能. 水污染指数法和模糊综合评价法在水质评价中的应用[J]. 河南师范大学学报(自然科学版), 2020, 48(6): 7.
 - NING YM, YIN FN. Application of water pollution index method and fuzzy comprehensive evaluation method in water quality evaluation [J]. J Henan Normal Univ (Nat Sci Ed), 2020, 48(6): 7.
- [20] 陈志凡,徐薇,化艳旭,等.开封城市河流底泥重金属积累生态风险评价及同位素源解析[J].环境科学学报,2020,40(4):10.
 - CHEN ZF, XU W, HUA YX, et al. Ecological risk assessment and isotope source analysis of heavy metal accumulation in river sediments in Kaifeng city [J]. J Environ Sci, 2020, 40(4): 10.
- [21] 徐轶肖,张腾,赵鹏,等.北部湾贝类重金属污染特征及健康风险评价 [J]. 环境科学与技术,2019,(S2):7.
 - XU YX, ZHANG T, ZHAO P, et al. Heavy metal contamination and health risk assessment of shellfish in the Beibu Gulf [J]. Environ Sci Technol, 2019, 42(S2): 7.
- [22] BHATTI S, SAMBYAL V, SINGH J, et al. Analysis of soil characteristics of different land uses and metal bioaccumulation in wheat grown around rivers: Possible human health risk assessment [J]. Environ Dev Sustainab, 2017, 19(2): 1–18.
- [23] MOALLEM SA, KARIMI G. Exposure assessment for mercury from consumption of marine fish in Iran [J]. Toxicol Environ Chem Rev, 2010, 92(6): 1213–1218.

- [24] 裘奕斐, 王静, 徐敏. 江苏滨海县近岸海域海水, 沉积物和生物体重金属分布及健康风险评价[J]. 南京师大学报(自然科学版), 2021. DOI: 10.3969/j.issn.1001-4616.2021.01.011
 - QIU YF, WANG J, XU M. Distribution and health risk assessment of heavy metals in seawater, sediments and organisms in coastal areas of Binhai in Jiangsu Province [J]. J Nanjing Normal Univ (Nat Sci Ed), 2021. DOI: 10.3969/j.issn.1001-4616.2021.01.011
- [25] 中国环境监测总站、中国土壤元素背景值[M]、北京:中国环境科学出版社、1990.
 - China National Environmental Monitoring Centre. Background values of Chinese soil elements [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1990
- [26] 孙敏华,姜翠玲,张鹏,等.太湖流域梁塘河沉积物重金属生态风险评价[J].环境工程,2015,(8):118-122.
 - SUN MH, JIANG CL, ZHANG P, et al. Ecological risk assessment of heavy metals in sedimentsin Liangtang River of Taihu basin [J]. Environ Eng, 2015, (8): 118-122.
- [27] 佀国涵, 袁家富, 彭成林, 等. 稻虾共作模式下小龙虾养殖对水体环境的影响[J]. 江苏农业科学, 2019, 47(23): 5.
 - XU GH, YUAN JF, PENG CL, *et al.* Effects of crayfish culture on water environment under rice shrimp co cropping mode [J]. Jiangsu Agric Sci, 2019, 47(23): 5.
- [28] 曹磊,王方园,刘书谐,等.三角帆蚌养殖水体重金属污染的研究进展 [J]. 环境保护与循环经济, 2017, 37(9): 4.
 - CAO L, WANG FY, LIU SX, *et al.* Research progress on heavy metal pollution of *Hyriopsis cumingii* aquaculture water [J]. Environ Protect Circul Econ, 2017, 37(9): 4.
- [29] 吴亦潇, 张维昊. 湖北省水产养殖污染现状及修复技术研究进展[C]. 中国环境科学学会学术年会, 2014.
 - WU YX, ZHANG WH. Current situation of aquaculture pollution in Hubei Province and research progress of remediation technology [C]. Annual Academic Meeting of Chinese Society of Environ Sci, 2014.
- [30] 张帆,李海露,程凯凯. "稻鸭共生"生态系统重金属镉的转化,迁移及循环特征[J]. 中国生态农业学报,2016,(9): 8.
 - ZHANG F, LI HL, CHENG KK. Characteristics of heavy metal (cadmium)

- transformation, migration and cycling in rice-duck mutual ecosystem [J]. Chin J Eco-Agric, 2016, (9): 8.
- [31] 唐建军,李巍, 吕修涛,等. 中国稻渔综合种养产业的发展现状与若干 思考[J]. 中国稻米, 2020, 26(5): 10.
 - TANG JJ, LI W, LV XT, et al. Development status and rethinking of the integrated rice-fish system in China [J]. Rice Sci, 2020, 26(5): 10.
- [32] 骆仁军,姜涛,陈修报,等.不同产地中华绒螯蟹养殖生境中水和底泥元素分析[J]. 江苏农业科学, 2020, 48(7): 7.
 - LUO RJ, JIANG T, CHEN XB, et al. Analysis of water and sediment elements in the breeding habitat of *Eriocheir sinensis from* different habitats [J]. Jiangsu Agric sci, 2020, 48(7): 7.
- [33] 谢文平,朱新平,马丽莎,等. 珠江三角洲 4 种淡水养殖鱼类重金属的 残留及食用风险评价[J]. 生态毒理学报, 2017, 12(5): 10.
 - XIE WP, ZHU XP, MA LS, *et al.* Residues and safety evaluation of heavy metals in four species freshwater fish from fish pond of Pearl River Delta [J]. Asian J Ecotoxicol, 2017, 12(5): 294–303.
- [34] 彭倩. 小龙虾重金属污染及人体健康风险评估[D]. 南京: 南京大学,
 - PENG Q. Heavy metal pollution and human health risk assessment of crayfish [D]. Nanjing: Nanjing University, 2015.

(责任编辑: 韩晓红 张晓寒)

作者简介



任 娣,硕士,工程师,主要研究方向 为水产品质量安全。

E-mail: 892291929@qq.com

朱晓华,硕士,研究员,主要研究方向 为水产品质量安全。

E-mail: xhz824@sina.com