

青岛地区水产品重金属含量及居民重金属暴露风险

李渊^{1,2} 王川³ 冯琳^{1,2} 丁丽^{1,2} 杨劭晨³ 李军^{1,2} 李平^{1,2,3*}

(¹贵州医科大学公共卫生学院, 贵阳 550025; ²贵州医科大学环境污染与疾病监控教育部重点实验室, 贵阳 550025; ³中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550081)

摘要 为了解青岛市水产品重金属污染状况, 评估当地居民重金属的暴露水平以及探讨食用水产品对居民头发重金属含量的影响, 采集青岛市不同售点 19 种常见水产样品 156 份和青岛市 3 个市辖区居民头发样品 130 份, 采用 ICP-MS 测定样品中 Cd、As、Pb、Cr、Cu 和 Zn 六种重金属含量。结果表明: 青岛地区市售 19 类 156 份水产品中, Cd、As、Pb、Cr、Cu 和 Zn 含量的中位数分别为 0.006、1.18、0.015、0.253、2.06 和 11.8 mg · kg⁻¹, 不同种类的水产品重金属含量差异显著; 扇贝和虾蛄 Cd 平均含量分别为 (2.45 ± 2.37) 和 (1.14 ± 0.16) mg · kg⁻¹, 其中 50.0% 的扇贝样品 (6/12) 和 100% 的虾蛄样品 (10/10) 超过我国食品安全国家标准限值 2.0 mg · kg⁻¹ (双壳类) 和 0.5 mg · kg⁻¹ (甲壳类); 青岛市居民头发 Cd、As、Pb、Cr、Cu 和 Zn 含量的中位数分别为 0.0231、0.0518、0.988、0.595、7.81 和 155 mg · kg⁻¹, 分别超出我国居民头发重金属建议值比例为 0、1.5%、2.3%、6.9%、2.3% 和 28.4%; 食鱼频率高的居民头发 Zn 含量显著偏高; 头发 As、Pb 和 Zn 含量随年龄变化具有显著差异; 男性发 As 含量显著高于女性, 女性发 Zn 含量显著高于男性。上述结果表明, 青岛市售扇贝、虾蛄存在 Cd 含量超标, 应避免食用; 牡蛎 Zn 平均含量达 107 mg · kg⁻¹, 应控制其食用量。青岛市居民头发重金属含量的主要影响因素包括年龄、性别、水产品的食用频率。青岛市居民头发 Zn 含量超标率达 28%, 说明当地人群存在一定的 Zn 暴露风险。本研究可为青岛市居民水产品膳食摄入和重金属暴露风险控制提供重要指导。

关键词 水产品; 头发; 重金属; 青岛

Heavy metal concentrations in aquatic products and health risk of human exposure in Qingdao City. LI Yuan^{1,2}, WANG Chuan³, FENG Lin^{1,2}, DING Li^{1,2}, YANG Shao-chen³, LI Jun^{1,2}, LI Ping^{1,2,3*} (¹School of Public Health, Guizhou Medical University, Guiyang 550025, China; ²Key Laboratory of Environmental Pollution Monitoring and Disease Control, Ministry of Education, Guizhou Medical University, Guiyang 550025, China; ³State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550081, China).

Abstract: We investigated the pollution status of heavy metals in aquatic products and human exposure, and explored the influence of aquatic products consumption on the concentrations of heavy metals in residents' hair in Qingdao. A total of 156 aquatic products samples with 19 common species and 130 human hair samples were collected in Qingdao. The concentrations of Cd, As, Pb, Cr, Cu, and Zn in aquatic products and hair samples were measured by ICP-MS. The median values of Cd, As, Pb, Cr, Cu, and Zn concentrations in 156 aquatic products samples were 0.006, 1.18, 0.015, 0.253, 2.06, and 11.8 mg · kg⁻¹, respectively. The concentrations of heavy metals varied across different kinds of aquatic products. The averages of Cd concentrations in scallops and shrimps were 2.45 and 1.14 mg · kg⁻¹, respectively, with 50% of scallop samples

国家自然科学基金项目(41573132)资助。

收稿日期: 2021-02-28 接受日期: 2021-06-02

* 通讯作者 E-mail: liping@mail.gyig.ac.cn

(6/12) and 100% of shrimps samples (10/10) exceeding China's national food safety standard. The median values of Cd, As, Pb, Cr, Cu, and Zn concentrations in residents' hair samples were 0.0231, 0.0518, 0.988, 0.595, 7.81, and 155 mg · kg⁻¹, respectively, with the exceeding rates being 0, 1.5%, 2.3%, 6.9%, 2.3% and 28.4% compared with national recommended values for hair heavy metals, respectively. The hair Zn concentrations in residents with high frequency of fish consumption were significantly elevated. The hair Pb, As, and Zn concentrations changed significantly with age. The hair As concentration of male was significantly higher than that of female ($P < 0.01$), and hair Zn concentration of female was significantly higher than that of male ($P < 0.01$). Our results indicated that the Cd concentrations in scallops and shrimps in Qingdao were relatively high, which should be restricted for consumption. The average Zn concentration in oyster was 107 mg · kg⁻¹, which should be limited for consumption. The main influencing factors of heavy metals concentrations in human hair include age, gender, and the consumption frequency of aquatic products. About 28% of hair Zn concentrations exceeded the notional recommended value, indicating that residents in Qingdao had potential risks of Zn exposure. Our results provide important reference for dietary guidance of aquatic products and risk control of heavy metal exposure in Qingdao.

Key words: aquatic product; human hair; heavy metal; Qingdao.

重金属污染是世界范围内重要的环境污染问题 (He *et al.* 2016)。由于重金属具有不易降解、半衰期较长等特点,重金属会以多种化学形式在不同的环境介质中积累,并通过食物摄入、呼吸吸入和皮肤接触等途径进入人体,造成各种器官的不可逆损害(致癌、致畸和致突变) (Xie *et al.* 2017)。慢性低剂量的镉暴露可引起骨质损伤和肾脏功能障碍 (Zukowska *et al.* 2008); 砷暴露可导致多样性皮肤损害、多器官衰竭及皮肤癌 (Susan *et al.* 2019); 铅暴露则主要对人的神经系统造成损害,导致多发性神经病和铅性脑病,尤其对儿童的智力发育造成严重影响 (Njati *et al.* 2019)。铬、铜和锌虽然是人体所必需的微量元素,但过量摄入仍会对人体造成危害,如铬中毒可引起皮肤及消化道损伤,过量铜摄入可能会造成呕吐、抽搐甚至死亡,长期高剂量接触锌则会破坏胆固醇平衡和生育能力 (Fu *et al.* 2011; Zhang *et al.* 2012)。

目前我国重金属污染现状十分严峻。近几年来我国废水中部分重金属排放量呈上升趋势,2018年废水排放总量高达700亿吨(中国统计年鉴,2019)。环境重金属污染会导致生态系统食物链各营养级遭受直接或间接的重金属暴露风险。底栖类水产动物和作为水生食物链顶端的鱼类则易于蓄积重金属,过量摄入会危害人体健康。通过食物摄入重金属是非职业接触重金属人群发生重金属暴露的主要途径 (Oyoo-Okoth *et al.* 2010; Skalny *et al.* 2018),因此由水产品消费所导致的重金属暴露问题不容忽视。头发、血液和尿液等生物标记物常被用于人体及环境的重金属暴露监测 (Chojnacka *et*

al. 2010)。头发样品由于具有便于采集、储存和化学组分稳定、可反映重金属长期暴露情况的特点,是人体重金属暴露的良好生物标志物 (Zhou *et al.* 2017)。

2018年山东省水产品总产量达961万吨,居全国第一。其中青岛市水产品总产量达104万吨,占山东省总产量12%,属于我国典型的水产城市(农业部渔业局 2019)。随着海湾开发及经济发展,海域生态环境也日益恶化,青岛胶州湾等海域的重金属污染较为严重 (Qu *et al.* 2020),然而青岛人群暴露重金属的相关研究却鲜有报道。本研究通过测定青岛地区市售常见水产品 and 居民头发中重金属含量,揭示当地居民重金属暴露水平,探究人群头发重金属含量与水产品食用频率、年龄、性别等因素的相关关系,为我国沿海地区居民水产品膳食指导提供参考。

1 材料与方法

1.1 样品采集与处理

于2017年11月系统采集青岛市3个大型水产市场19种常见水产样品156份和青岛市2个城区、1个郊区居民头发样品130份,同时对居民进行问卷调查,了解居民的基本信息及饮食生活信息。头发样品采集及问卷调查时遵循居民口头知情、同意的原则。

水产品样品采自城阳蔬菜水产品批发市场、市南水产品批发市场及沙子口海鲜码头,均属于青岛具有代表性的大型水产出售市场。在这3个批发市场不同售点随机采集19种常见水产品,样品采集后

置于冰袋保存后立即送至实验室,测量体长、体重。鱼类用不锈钢刀刮去鳞片,非鱼类除去外壳,取可食用部分作为分析样品。为保证样品均一性,将样品在-80℃下冷冻干燥,研磨过100目筛,装于聚乙烯自封袋4℃保存(赵宇航等,2017)。采集的水产品样品的含水率均值±标准差为79.5%±5.4%。

头发样品采集时,使用清洁的不锈钢剪刀在调查对象后枕部距头皮3cm内剪取1~2g头发作为样品,装于纸袋后置于干净的聚乙烯密封袋保存。头发样品分别用洗涤剂、超纯水和丙酮清洗3次,自然风干后用干净不锈钢剪刀剪至粉末状待测(Li et al., 2011)。采集对象的纳入标准:当地居住时间大于1年、年龄大于2岁的健康个体;排除标准:最近一年有染发烫发或职业暴露重金属的居民。

1.2 仪器测试及质量控制

取50mg经处理的样品(水产品 and 头发)于聚四氟乙烯内杯中,加入3mL二次蒸馏的硝酸(工艺超纯),150℃保持13h。待冷却后取出,加入1mL的30% H₂O₂(优纯级),110℃赶酸至近干。加入3mL的DDW和1mL二次蒸馏的硝酸(工艺超纯),150℃恒温7h,取出后定容待测。

使用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS, Nex-

ION 300X, PerkinElmer)测定头发和水产品重金属含量。实验采用空白(超纯水)、平行样、人发标准物质(GBW 07601a、GBW 09101b)以及鱼样标准物质(NRC-Tort3)测定进行严格的质量控制。鱼样标准物质的重金属平均回收率为95.6%±9.1%,头发标准物质重金属平均回收率为93.4%±8.2%,平行样品测定相对偏差(RSD)<10%。

1.3 统计分析

数据采用SPSS 25.0 for Windows软件进行统计分析。对实验中重金属数据进行正态性检验,各项定量数据若符合正态分布,采用平均值±标准差表示;偏态分布数据若经对数转换呈正态分布,采用几何均数来表示;不符合正态分布则采用中位数(四分位数)来表示。变量间的差异性分析采用Mann-Whitney检验,变量间的相关性分析采用Spearman相关系数,多因素分析采用有序Logistic回归。P<0.05为差异有统计学意义。

2 结果与分析

2.1 水产品重金属含量分布

如表1所示,青岛市市售水产品的Cd、As、Pb、Cr、Cu和Zn含量中位数(四分位数)分别为0.005

表1 青岛地区不同种类海产品重金属含量分布(mg·kg⁻¹,湿重)
Table 1 Heavy metal concentrations in seafood in Qingdao City (mg·kg⁻¹, wet weight)

分类 Category	名称 Species	拉丁名 Latin name	n	Cd	As	Pb	Cr	Cu	Zn
鱼类 Fish	梭鱼 Redeye mullet	<i>Liza haematocheila</i>	6	0.002	3.04	0.004	0.071	0.158	3.19
	鳎鱼 Flounder	<i>Pleuronectiformes</i>	10	0.002	1.01	0.006	0.106	0.151	6.90
	舌鳎鱼 Tongue sole	<i>Cynoglossus robustus</i>	9	0.003	12.40	0.008	0.253	0.162	3.70
	小黄鱼 Little yellow croaker	<i>Larimichthys polyactis</i>	13	0.001	2.11	0.002	0.100	0.382	3.02
	鲅鱼 Spanish mackerel	<i>Scomberomorus niphonius</i>	9	0.002	1.24	0.002	0.309	0.508	5.23
	海鲈鱼 Sea bass	<i>Perca fluviatilis</i>	10	0.001	0.32	0.002	0.134	0.149	4.26
	多宝鱼 Turbot	<i>Scophthalmus maxims</i>	3	0.002	1.72	0.001	0.077	0.130	3.98
	均值 Mean			0.002	1.50	0.003	0.148	0.276	5.01
	软体类 Mollusk	扇贝 Scallop	<i>Pinna pectinate</i>	12	2.450	1.33	0.025	0.264	2.220
文蛤 Asiatic hard clam		<i>Meretrix meretrix</i>	7	0.338	3.50	0.083	0.140	1.090	11.60
贻贝 Mussel		<i>Mytilus edulis</i>	6	0.508	2.18	0.148	0.372	2.060	24.80
海蜇 Jellyfish		<i>Rhopilema esculenta</i>	11	0.006	0.16	0.031	0.431	0.247	0.73
蛤 Clam		<i>Venerupis philippinaram</i>	4	0.234	1.54	0.106	1.230	1.160	11.90
牡蛎 Oyster		<i>Ostrea rivularis</i>	7	1.420	1.83	0.169	0.301	33.200	107.00
章鱼 Octopus		<i>Octopus variabilis</i>	11	0.003	6.07	0.035	0.074	3.930	13.20
鱿鱼 Squid		<i>Loligo japonica</i>	8	0.104	0.48	0.009	0.382	2.320	18.00
均值 Mean				0.165	1.55	0.059	0.304	2.470	14.70
甲壳类 Crustacean	虾姑 Mantis shrimp	<i>Squilla oratoria</i>	10	1.140	9.85	0.015	0.171	18.700	18.90
	鹰爪虾 Shrimp	<i>Trachypenaeus curvirostris</i>	9	0.024	5.65	0.020	0.384	2.930	10.90
	毛虾 Shrimp	<i>Acetes chinensis</i>	4	0.002	0.18	0.018	0.169	5.470	13.30
	基围虾 Shrimp	<i>Metapenaeus ensis</i>	7	0.004	0.61	0.003	0.091	3.540	12.30
	均值 Mean			0.022	1.58	0.011	0.178	5.700	13.50
总均值 Mean			0.020	1.54	0.014	0.209	1.260	9.60	

(0.001, 0.365)、1.92(0.942, 4.67)、0.018(0.004, 0.058)、0.253(0.077, 0.486)、1.48(0.259, 3.28)和10.6(3.53, 18.6) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。扇贝和虾蛄 Cd 含量的中位数(四分位数)分别为1.99(1.67, 2.35)和1.13(0.991, 1.26) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 分别有50.0%(6/12)和100%(10/10)的样品含量超过我国食品安全标准 GB 2762—2017 规定的限值2.0 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (双壳类)、0.5 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (甲壳类)。

2.2 人发重金属含量分布

青岛地区居民头发重金属 Cd、As、Pb、Cr、Cu 和 Zn 含量的中位数(四分位数)分别为0.023(0.013, 0.046)、0.052(0.026, 0.1)、0.988(0.477, 1.93)、0.595(0.338, 0.822)、7.81(6.75, 9.46)和155(121, 220) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。与中国居民头发中重金属的建议正常值上限相比(秦俊法等, 2004; Ni *et al.*, 2011), 青岛地区居民头发 Cd、As、Pb、Cr、Cu 和 Zn 含量超出限值的比例分别为0、1.5%(2/130)、2.3%(3/130)、6.9%(9/130)、2.3%(3/130)和28.4%(37/130)。

3 讨论

3.1 水产品重金属含量

3.1.1 水产品重金属含量水平 将本研究中水产品重金属含量与国内其他地区进行比较(表2), 发现青岛地区水产品重金属含量总体低于文献报道的其他地区重金属含量水平。其中, Cd 和 Pb 含量低于其他地区的水产品含量, As 含量高于大部分其他文献报道值, Cr 含量与其他地区含量水平接近, Cu 和 Zn 含量则低于大部分地区报道值。水产品种类和所处水生环境污染程度的不同对其体内的重金属含量存在明显影响(Liu *et al.*, 2018)。本研究中, 青岛地区水产品重金属含量除 As 外总体低于或接近国内其他地区, 表明青岛地区水域水产品未受到明

显的人为源影响。前人研究也表明青岛市售水产品的重金属污染程度总体较低, 如岛市售水产品 Cd、As 和 Pb 平均含量分别为0.447、2.27和0.093 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($n=20$), 水产品重金属污染程度总体较低(郝文等, 2015); 青岛市售贝类 Cd 和 Pb 含量均值分别为0.259和0.166 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($n=203$), 污染程度较低(孙黎黎等, 2017)。

3.1.2 水产品重金属的影响因素 鱼类重金属含量的影响因素包括体长、体重、种类和生长环境等。本研究中, 舌鳎鱼 Cd、Pb 含量与体长显著正相关($r_{\text{Cd}}=0.769$, $P<0.05$; $r_{\text{Pb}}=0.736$, $P<0.05$), 小黄鱼 As 含量与体长显著正相关($r=0.526$, $P<0.05$)。其他鱼类体长、体重等因素与其体内重金属含量未发现显著相关性, 可能是不同水产品的不同生长环境所致。水产品在不同污染程度的水体中生长, 体内重金属含量的富集程度会因环境不同而异, 造成鱼类重金属含量与其体长、体重的相关性不明显(曾欢等, 2021)。

软体类样品的 Cd、Pb、Cr 和 Zn 含量在青岛市售水产品中最高(表1)。贝类属于底栖类滤食性动物, 由于其独特的滤食性习性, 重金属更易在其体内蓄积, 因而贝类软体动物的重金属含量偏高(方铃等, 2019)。甲壳类中虾蛄 Cd、Cu 含量显著高于其他虾类, 可能是虾蛄属于底栖类肉食性动物, 常以捕食其他小鱼、虾类和小型无脊椎动物为生, 因而更容易蓄积重金属(李磊等, 2015)。

3.2 头发重金属含量

3.2.1 头发重金属含量水平 将本研究中居民头发重金属含量与国内其他地区的研究结果进行比较(表3), 发现青岛地区居民头发重金属含量总体与文献报道的其他无污染地区含量水平相当。其中, 与重金属污染区、矿区相比, 青岛居民除头发 Zn 含量高于赫章居民外(Briki *et al.*, 2017), 其他头发重

表2 不同地区水产品重金属含量对比($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)

Table 2 Comparison of heavy metal concentrations in aquatic products in different areas

地区 Region	Cd	As	Pb	Cr	Cu	Zn	参考文献 Reference
湛江 Zhanjiang	0.020	-	0.260	-	0.48	15.8	孙妮等, 2015
珠江 Zhujiang	0.206	-	0.047	0.168	10.50	11.6	谢文平等, 2019
海南 Hainan	0.077	-	0.124	0.059	4.25	20.1	Hao <i>et al.</i> , 2019
秦皇岛 Qinhuangdao	1.130	0.161	0.188	0.107	-	-	隋茜茜等, 2020
广西 Guangxi	0.470	0.570	0.030	0.280	4.84	51.6	徐轶肖等, 2019
福建 Fujian	2.940	1.690	0.370	0.530	1.86	30.1	杨妙峰等, 2019
全国 China	0.028	0.802	0.038	0.210	1.34	10.5	吴永宁等, 2018
青岛 Qingdao	0.020	1.540	0.014	0.209	1.26	9.6	本研究 This study

表3 不同地区居民头发重金属含量对比

Table 3 Comparison of hair heavy metal levels in different areas ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)

地区 Region	n	重金属含量 Heavy metal concentrations						参考文献 Reference	
		Cd	As	Pb	Cr	Cu	Zn		
污染区或矿区 Contaminated area or mining area	天津(污水灌溉区) Tianjin (Sewage Irrigation Area)	199	0.21	0.62	13.70	2.65	16.80	197	耿铭烁等 2018
	南丹(铅锌矿区) Nandan (Lead and zinc mining area)	151	2.47	1.26	20.90	-	9.88	393	田美玲等 2016
	赫章(废弃铅锌矿区) Hezhang (Abandoned lead and zinc mining area)	44	0.33	-	5.41	12.60	15.80	112	Briki <i>et al.</i> , 2017
无污染区 No pollution area	北京 Beijing	225	0.07	0.13	1.56	1.56	-	-	Gang <i>et al.</i> , 2017
	贵州 Guizhou	100	0.04	-	0.60	0.32	-	-	张晓娟等 2020
	上海 Shanghai	84	0.11	-	1.64	-	11.40	121	王怡等 2017
	大连 Dalian	102	0.09	0.07	2.89	-	-	-	梁刚等, 2018
	桐庐 Tonglu	190	0.03	0.18	1.11	0.41	8.73	168	Luo <i>et al.</i> , 2014
	青岛 Qingdao	130	0.02	0.05	1.01	0.45	8.22	162	本研究 This study

金属含量均低于污染区及矿区居民;与无明显污染源地区相比,青岛居民头发 Cd 和 As 含量低于其他地区的文献报道值,头发 Pb、Cr、Cu 和 Zn 含量则与其他地区的含量水平接近。然而,青岛居民头发 Zn 有 28% 的样品含量超过中国居民头发中重金属的建议正常值上限 $210 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (Ni *et al.*, 2011),说明青岛地区居民存在一定的 Zn 暴露风险。青岛居民水产品膳食摄入较多,每日人均水产品摄入量达到 $101 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$,且软体类水产品摄入量占比 54% (张荣昶 2020)。本研究发现,青岛软体类水产品 Zn 含量总体偏高,其中牡蛎 Zn 平均含量高达 $107 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (表 1)。由此可见,食用 Zn 含量较高的水产品可能是青岛居民发 Zn 含量偏高的重要原因。

3.2.2 头发重金属的影响因素 (1) 食鱼频率。根据居民的食鱼频率将其分为高、中、低 3 组:高组,食鱼频率 ≥ 20 次 \cdot 月 $^{-1}$;中组,食鱼频率 5~19 次 \cdot 月 $^{-1}$;低组,食鱼频率 ≤ 4 次 \cdot 月 $^{-1}$ 。不同食鱼频率组的居民头发重金属含量统计结果表明,发 Cr、Cu

和 Zn 含量在各组间存在显著差异。其中,头发 Cu 和 Zn 含量随食鱼频次的增加呈上升趋势(图 1),对其进行相关性分析发现,居民头发 Cu 含量与食鱼频率呈显著正相关 ($r = 0.364, P < 0.05$),发 Zn 含量与食鱼频率也呈显著正相关 ($r = 0.215, P < 0.05$)。通过 Logistic 回归分析结果发现,食鱼频率高者头发 Zn 含量增加的 OR 值较食鱼频率低者高,说明食用水产品是青岛地区居民头发 Zn 含量升高的主要原因之一(表 4 表 5)。目前已有很多研究指出,食鱼频率对头发重金属含量具有明显影响,如在加纳利群岛的食鱼较多人群比普通人群具有更高的发 Zn 含量 (Gonzalez-Reimers *et al.*, 2014),在肯尼亚维多利亚湖附近也观察到食鱼频率和居民头发 Cu 含量存在明显的相关关系 (Oyoo-Okoth *et al.*, 2010)。

(2) 年龄。不同年龄组居民头发重金属含量的差异性分析结果表明(图 2),As、Pb 和 Zn 含量在各组间表现出显著的差异性。各年龄组中 ≤ 18 组头发 As 含量最低,且 19~44 岁组头发 As 含量显著高

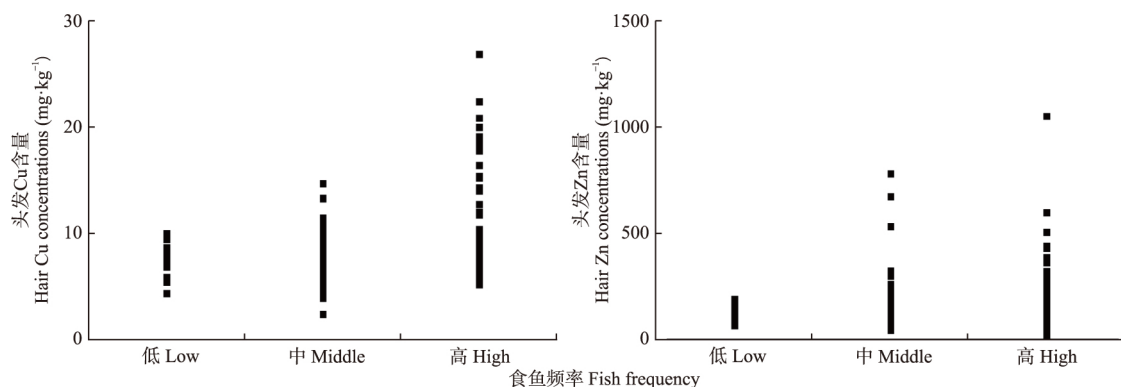


图1 不同食鱼频率居民头发重金属含量

Fig.1 Human heavy metal concentrations in population with different fish consumption frequencies

表 4 居民头发 Cu 含量影响因素的有序 Logistic 回归分析

Table 4 Logistic regression analysis of factors on copper concentrations in human hair

因素 Factors		<i>n</i>	标准误 <i>SE</i>	Wald χ^2	<i>P</i>	OR 值 OR value	OR 95% 置信区间 OR 95% confidence interval	
							下限 Lower limit	上限 Upper limit
							食鱼频率 Fish consumption frequency	高 High
	中 Middle	55	0.52	0.63	0.42	0.66	0.23	1.84
	低 Low	17	-	-	-	1	-	-
性别 Gender	男 Male	74	0.5	1.20	0.27	0.57	0.21	1.55
	女 Female	56	-	-	-	1	-	-
年龄 Age	≤18	18	0.89	2.20	0.13	0.26	0.05	1.53
	19~44	77	0.77	7.52	0.12	0.11	0.02	0.54
	45~59	24	0.81	6.42	0.11	0.13	0.03	0.63
	≥60	11	-	-	-	1	-	-
吸烟 Smoking	一直抽烟 Yes	74	0.50	2.05	0.15	0.49	0.18	1.30
	已经戒烟 Smoking cessation	14	0.67	0.93	0.33	0.52	0.14	1.95
	从不抽烟 No	42	-	-	-	1	-	-
饮酒 Drinking	否 No	72	0.45	0.32	0.56	0.77	0.32	1.88
	是 Yes	58	-	-	-	1	-	-
化妆 Cosmetics	否 No	106	0.50	0.66	0.41	1.51	0.56	4.10
	是 Yes	24	-	-	-	1	-	-
职业 Occupation	学生 Student	26	0.59	0.16	0.58	1.25	0.41	3.82
	企业职工 Staff	23	0.58	3.91	0.05	3.20	1.01	10.20
	服务员 Waiter	20	0.59	2.69	0.10	2.63	0.83	8.35
	工人 Worker	31	0.53	2.09	0.14	2.16	0.76	6.09
	无 Unemployed	30	-	-	-	1	-	-

表 5 居民头发 Zn 含量影响因素的有序 Logistic 回归分析

Table 5 Logistic regression analysis of factors on zinc concentrations in human hair

因素 Factors		<i>n</i>	标准误 <i>SE</i>	Wald χ^2	<i>P</i>	OR 值 OR value	OR 95% 置信区间 OR 95% confidence interval	
							下限 Lower limit	上限 Upper limit
							食鱼频率 Fish consumption frequency	高 High
	中 Middle	55	0.56	2.85	0.09	2.57	0.86	7.71
	低 Low	17	-	-	-	1	-	-
性别 Gender	男 Male	74	0.52	6.51	0.01	0.26	0.09	0.73
	女 Female	56	-	-	-	1	-	-
年龄 Age	≤18	18	0.87	0.91	0.34	2.30	0.42	12.70
	19~44	77	0.77	2.72	0.10	3.53	0.79	15.80
	45~59	24	0.78	0.01	0.94	1.06	0.23	4.88
	≥60	11	-	-	-	1	-	-
吸烟 Smoking	一直抽烟 Yes	74	0.51	2.33	0.13	0.46	0.17	1.25
	已经戒烟 Smoking cessation	14	0.67	0.16	0.69	1.30	0.35	4.88
	从不抽烟 No	42	-	-	-	1	-	-
饮酒 Drinking	否 No	72	0.46	0.32	0.57	0.77	0.31	1.90
	是 Yes	58	-	-	-	1	-	-
化妆 Cosmetics	否 No	106	0.55	10.80	0.00	0.16	0.06	0.48
	是 Yes	24	-	-	-	1	-	-
职业 Occupation	学生 Student	26	0.57	2.86	0.09	0.38	0.12	1.17
	企业职工 Staff	23	0.61	1.14	0.29	0.52	0.16	1.72
	服务员 Waiter	20	0.61	0.42	0.52	0.68	0.21	2.21
	工人 Worker	31	0.55	1.80	0.18	0.48	0.17	1.40
	无 Unemployed	30	-	-	-	1	-	-

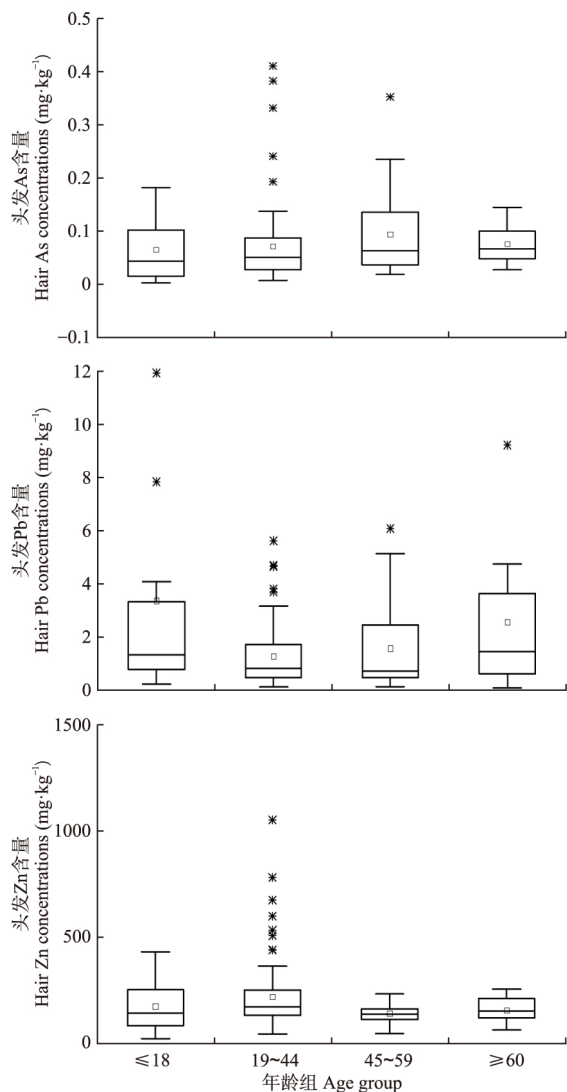


图2 不同年龄组居民头发重金属含量差异

Fig.2 Hair heavy metal concentrations in different age groups

注: 每个方框代表四分位数范围(第25和第75百分位), 方框中间附近的线条是第50百分位(中位数), 方框上下线条代表第5和第95百分位, 方框中间方块代表平均值, *号代表异常值。

Note: Each box represents interquartile range (25th and 75th percentile), the band near the middle of the box is the 50th percentile (the median), the whisker represents 5th and 95th percentile, the squares in the box represent the mean value, and the * represents an outlier.

于 ≤ 18 组($P < 0.05$), 同时头发As含量与吸烟呈显著正相关($r = 0.22$, $P < 0.05$)。通常成人较未成年更易接触到香烟, 这可能是 ≤ 18 组头发As含量最低的重要原因之一。头发Pb含量 ≤ 18 组最高, 且 ≤ 18 组头发Pb含量显著高于19~44岁组($P < 0.01$)。头发Pb含量通常在未成年阶段最高, 这是由于儿童正处于新陈代谢的旺盛阶段, 对Pb的吸收较成人更为敏感所致(耿明烁等, 2018)。头

发Zn含量19~44岁组最高, 且19~44岁组头发Zn含量显著高于45~59岁组($P < 0.01$), 这与Ali等(2019)在合肥的研究结果一致, 原因可能是中老年人蛋白质摄入不足。不同年龄段人群的头发重金属含量受地理位置、饮食习惯、人体代谢能力的不同可能出现差异(梁刚等, 2018), 目前对不同年龄人群头发重金属含量变化趋势的研究较多, 但并未有一致的结果, 因此揭示头发重金属含量与年龄段的关系还有待进一步研究。

(3) 其他因素。影响青岛居民头发重金属含量的因素还包括性别、吸烟和化妆品的使用。不同性别组人群头发重金属含量的差异性分析结果见图3, 其中男性头发As含量显著高于女性($P < 0.01$), 女性头发Zn含量显著高于男性($P < 0.01$)。

相关分析结果显示, 吸烟与头发As含量呈显著正相关($r = 0.22$, $P < 0.05$)。男性吸烟比例显著高于女性, 这可能是男性头发As含量高于女性的原因。香烟具有较高的As含量, 我国30种香烟As含量的范围为 $0.132 \sim 3.13 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 香烟中的As可随吸烟进入人体(滕曼等, 2007); 前人研究发现, 吸烟组头发As含量($0.94 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)显著高于不吸烟组($0.43 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) (Arain *et al.*, 2009)。

本研究发现, 化妆组人群头发Zn含量显著高于不化妆组($P < 0.01$), 化妆品的使用可能是导致女性头发Zn含量高于男性的重要原因之一。目前, 部分市面上的化妆品Zn含量较高。粉底液Zn平均含量达 $6.61 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 护发产品Zn均值可达 $36.8 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 以及扑面粉Zn含量高达 $112 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (Rasheed *et al.*, 2021; 赵璇等, 2021)。使用含纳米氧化Zn的化妆品5天后, 人群血液和尿液Zn含量有所增加, 表明少量的Zn(纳米颗粒或游离离子)能够穿透皮肤而进入人体(Lee *et al.*, 2020)。

4 结论

青岛地区市售水产品中Cd、Pb、Cr、Cu和Zn含量总体呈中低水平, As含量呈较高水平。水产品中扇贝、虾蛄Cd平均含量分别为 2.45 和 $1.14 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 超标率分别为50%和100%, 青岛居民应避免食用; 牡蛎Zn平均含量达 $107 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 过量食用可能存在一定的Zn暴露风险。青岛地区居民头发Cd、As、Pb、Cr和Cu含量大部分低于中国居民正常值上限, 但头发Zn含量超标率为28.4%, 表明该地区

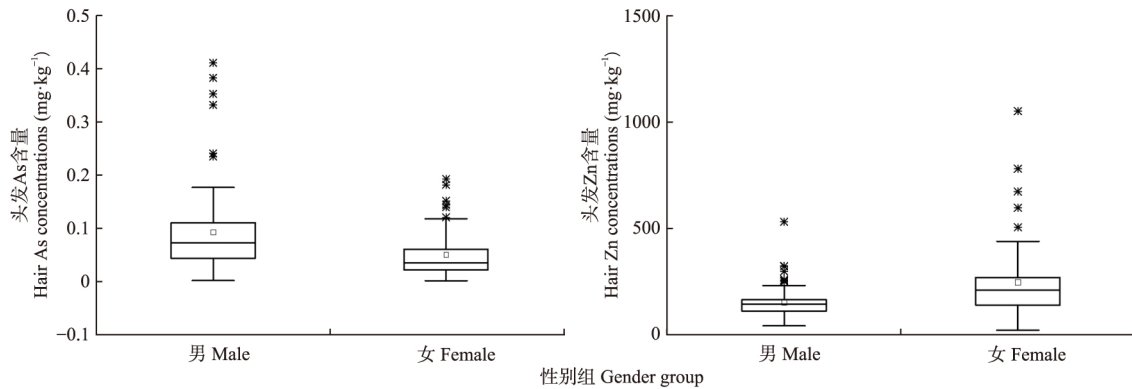


图3 不同性别组居民头发重金属含量差异

Fig.3 Hair heavy metal concentrations in different gender groups

注: 每个方框代表四分位数范围(第25和第75百分位), 方框中间附近的线条是第50百分位(中位数), 方框上下线条代表第5和第95百分位, 方框中间方块代表平均值, *号代表异常值。

Note: Each box represents interquartile range (25th and 75th percentile), the band near the middle of the box is the 50th percentile (the median), the whisker represents 5th and 95th percentile, and the squares in the box represent the mean value, and the * represents an outlier.

存在一定的Zn暴露风险。对居民头发重金属含量影响因素探究发现,水产品食用频率过高者可能面临更高的Zn暴露风险,年龄是影响头发As、Pb和Zn含量的重要因素,头发Zn和As含量还受到性别差异的影响。吸烟和化妆分别是头发As和Zn含量增高的危险因素。综上所述,青岛市售扇贝、虾蛄存在Cd含量超标,人群应避免食用该类水产品,且应控制Zn含量较高的牡蛎的食用量;此外,头发重金属含量与水产品食用频率的相关关系证明了食用水产品与人体重金属暴露存在一定相关性,该结果可为我国沿海地区居民水产品膳食指导提供科学依据。

参考文献

- 方玲,马海霞,李来好,等. 2019. 贝类中重金属镉的研究进展. 核农学报, **33**(7): 1408-1414. [Fang L, Ma HX, Li LH, et al. 2019. Research progress of heavy metal cadmium in shellfish. *Journal of Nuclear Agronomy*, **33**(7): 1408-1414.]
- 耿铭烁,王祖伟,苗钰婷,等. 2018. 天津市北京排污河灌区居民头发中重金属特征. 环境科学与技术, **41**(3): 42-46. [Geng MS, Wang ZW, Miao YT, et al. 2018. Characteristics of heavy metals in hair of residents in Beijing Sewage Irrigation District, Tianjin. *Environmental Science and Technology*, **41**(3): 42-46.]
- 郝文,曲青,郭英兰,等. 2015. 2014年青岛市市售食品中重金属污染调查. 职业与健康, **31**(18): 2482-2484. [Hao W, Qu Q, Guo YL, et al. 2015. Investigation on heavy metal pollution in food sold in Qingdao in 2014. *Occupational and Health*, **31**(18): 2482-2484.]
- 李磊,沈新强,李超,等. 2015. 六价铬离子在脊尾白虾和三疣梭子蟹体内的富集动力学. 浙江大学学报(农业与生命科学版), **41**(4): 476-482. [Li L, Shen XQ, Li

- C, et al. 2015. Enrichment kinetics of hexavalent chromium ions in the body of white shrimp and *Portunus tritunculus*. *Journal of Zhejiang University (Agriculture & Life Sciences)*, **41**(4): 476-482.]
- 梁刚,潘立刚,刘新会,等. 2018. 大连市居民头发典型重金属富集特征研究. 环境科学学报, **38**(12): 4848-4853. [Liang G, Pan LG, Liu XH, et al. 2018. Study on characteristic of heavy metal accumulation in hair of Dalian residents. *Journal of Environment Science*, **38**(12): 4848-4853.]
- 农业部渔业局. 2019. 中国渔业统计年鉴. 北京: 中国农业出版社. [The People's Republic of China Ministry of Agriculture, Fisher Bureau. 2019. China Fishery Statistical Yearbook. Beijing: China Agriculture Press.]
- 秦俊法. 2004. 中国居民的头发铅、镉、砷、汞正常值上限. 广东微量元素科学, (4): 29-37. [Qin JF. 2004. The upper limit of normal value of lead, cadmium, arsenic and mercury in hair of Chinese residents. *Guangdong Trace Elements Science*, (4): 29-37.]
- 隋茜茜,余金橙,朱金艳,等. 2020. 秦皇岛海域食用贝类重金属污染情况分析. 食品工业科技, **41**(10): 196-202. [Sui Q, Yu JC, Zhu JY, et al. 2020. Analysis of heavy metal pollution of edible shellfish in Qinhuangdao. *Science and Technology of Food Industry*, **41**(10): 196-202.]
- 孙妮,黄蔚霞,于红兵. 2015. 湛江港海区沉积物和海洋生物中重金属的富集特征分析与评价. 海洋环境科学, **34**(5): 669-672. [Sun N, Huang WX, Yu HB. 2015. Analysis and evaluation of heavy metal enrichment in sediments and marine organisms in Zhanjiang Port. *Marine Environmental Science*, **34**(5): 669-672.]
- 孙黎黎. 2017. 2014、2015年青岛市黄岛区市售海水贝类重金属污染状况调查. 预防医学论坛, **23**(4): 318-320. [Sun LL. 2017. Investigation on the pollution of heavy metals in Marine shellfish for sale in Huangdao District of Qingdao City in 2014 and 2015. *Forum on Preventive Medi-*

- cine, **23**(4): 318–320.]
- 滕曼, 梁立娜, 朱永官. 2007. 国内30种香烟中砷的含量及其潜在健康风险分析. 环境化学, **26**(1): 112–113. [Teng M, Liang LN, Zhu YG. 2007. Arsenic content and potential health risk analysis of 30 kinds of cigarettes in China. *Environmental Chemistry*, **26**(1): 112–113.]
- 田美玲, 钟雪梅, 夏德尚, 等. 2016. 南丹矿业活动影响区人群头发中重金属含量特征. 环境科学, **37**(12): 4867–4873. [Tian ML, Zhong XM, Xia DS, et al. 2016. Characteristics of heavy metal content in human hair in the area affected by mining activities in Nandan. *Environmental Science*, **37**(12): 4867–4873.]
- 王怡, 王东启, 邱思静, 等. 2017. 上海市居民人发重金属含量及其空间分布特征研究. 环境科学学报, **37**(3): 1139–1145. [Wang Y, Wang DQ, Qiu SJ, et al. 2017. Study on the concentration and distribution of heavy metals in humans hair of Shanghai residents. *Journal of Environmental Science*, **37**(3): 1139–1145.]
- 吴永宁, 赵云峰, 李净光, 等. 2018. 中国第五次总膳食研究. 北京: 科学出版社. [Wu YN, Zhao YF, Li JG, et al. 2018. The Fifth Total Diet Study in China. Beijing: Science Press.]
- 谢文平, 马丽莎, 郑光明, 等. 2019. 珠江河网淡水鱼、虾和河蚬重金属污染特性及安全性评价. 农业资源与环境学报, **36**(6): 839–846. [Xie WP, Ma LS, Zheng GM, et al. 2019. Pollution characteristics and safety evaluation of heavy metals in freshwater fish shrimp and river clam in the Pearl River Network. *Journal of Agricultural Resources and Environment*, **36**(6): 839–846.]
- 徐轶肖, 张腾, 赵鹏, 等. 2019. 北部湾贝类重金属污染特征及健康风险评价. 环境科学与技术, **42**(S2): 38–44. [Xiu YX, Zhang T, Zhao P, et al. 2019. Pollution characteristics and health risk assessment of shellfish heavy metals in Beibu Gulf. *Environmental Science and Technology*, **42**(S2): 38–44.]
- 杨妙峰, 郑盛华, 席英玉, 等. 2019. 福建东山湾养殖贝类重金属污染状况及健康风险评价. 生态毒理学报, **14**(5): 308–317. [Yang MF, Zheng SH, Xi YY, et al. 2019. Pollution status and health risk appraisal of heavy metals from shellfish in Dongshan Bay, China. *Journal of Ecotoxicology*, **14**(5): 308–317.]
- 曾欢, 张华, 熊小英, 等. 2021. 鄱阳湖河湖交错区鱼类重金属含量特征及健康风险评估. 环境科学学报, **41**(2): 649–659. [Zeng H, Zhang H, Xiong XY, et al. 2021. Concentration characteristics and health risk assessment of heavy metals in fishes in the river-lake criss-crossing area of Poyang Lake. *Chinese Journal of Environmental Sciences*, **41**(2): 649–659.]
- 张荣昶. 2020. 青岛市市售海产品中镉、汞、砷的污染状况及居民暴露风险评估(硕士学位论文). 青岛: 青岛大学. [Zhang RC. 2020. Pollution Status of Cadmium, Mercury and Arsenic in Marine Products Sold in Qingdao and Risk Assessment of Exposure of Residents (Master's Thesis). Qingdao: Qingdao University.]
- 张晓娟, 夏坚, 颜松, 等. 2021. 贵州安顺青年群体发样典型重金属富集特征. 山东农业大学学报(自然科学版), **52**(1): 34–40. [Zhang XJ, Xia J, Yan S, et al. 2021. Accumulation characteristics of typical heavy metals in the hair samples of young people in Anshun, Guizhou Province. *Journal of Shandong Agricultural University (Natural Science Edition)*, **52**(1): 34–40.]
- 赵璇, 高庆瑞, 秦世丽, 等. 2021. 洗护发产品中8种重金属元素含量的测定. 日用化学工业, **51**(1): 78–82. [Zhao X, Gao QR, Qin SL, et al. 2021. Determination of eight heavy metal elements in hair washing and care products. *China Surfactant Detergent & Cosmetics*, **51**(1): 78–82.]
- 赵宇航, 陈敏, 涂瑞, 等. 2017. 舟山地区海产品汞含量及居民汞暴露风险. 生态学杂志, **36**(5): 1419–1425. [Zhao YH, Chen M, Tu R, et al. 2017. Mercury content of seafood and mercury exposure risk of residents in Zhoushan, China. *Chinese Journal of Ecology*, **36**(5): 1419–1425.]
- 中国国家统计局. 2019. 中国统计年鉴. 北京: 中国统计出版社. [National Bureau of Statistics of China. 2019. China Statistical Yearbooks. Beijing: China Statistical Press.]
- Ali MU, Liu G, Yousaf B, et al. 2019. Biomonitoring and health risks assessment of trace elements in various age- and gender-groups exposed to road dust in habitable urban-industrial areas of Hefei, China. *Environmental Pollution*, **224**: 809–817.
- Araim MB, Kazi TG, Baig JA, et al. 2009. Respiratory effects in people exposed to arsenic via the drinking water and tobacco smoking in southern part of Pakistan. *Science of the Total Environment*, **407**: 5524–5530.
- Briki M, Zhu Y, Gao Y, et al. 2017. Distribution and Health risk assessment to heavy metals near smelting and mining areas of Hezhang, China. *Environmental Monitoring and Assessment*, **189**: 458.
- Chojnacka K, Zielinska A, Gorecka H, et al. 2010. Reference values for hair minerals of Polish students. *Environmental Toxicology and Pharmacology*, **29**: 314–319.
- Fu FL, Wang Q. 2011. Removal of heavy metal ions from wastewaters: A review. *Journal of Environmental Management*, **92**: 407–418.
- Gang L, Pan LG, Liu XH, et al. 2017. Assessment of typical heavy metals in human hair of different age group and food-stuffs in Beijing, China. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, **14**: 914.
- Gonzalez-Reimers E, Martin GC, Galindo ML, et al. 2014. Lead, cadmium and zinc in hair samples: Relationship with dietary habits and urban environment. *Biological Trace Element Research*, **157**: 205–210.
- Hao Z, Chen L, Wang CL, et al. 2019. Heavy metal distribution and bioaccumulation ability in marine organisms from coastal regions of Hainan and Zhoushan, China. *Chemosphere*, **226**: 340–350.
- He MJ, Wei SQ, Sun YX, et al. 2016. Level of five metals in

- male hair from urban and rural areas of Chongqing, China. *Environmental Science and Pollution Research*, **23**: 22163–22171.
- Lee CC, Lin YH, Hou WC, et al. 2020. Exposure to ZnO/TiO₂ nanoparticles affects health outcomes in cosmetics sales-clerks. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, **17**: 6088.
- Li P, Feng XB, Qiu GL, et al. 2011. Hair can be a good bio-marker of occupational exposure to mercury vapor: Simulated experiments and field data analysis. *Science of the Total Environment*, **49**: 4484–4488.
- Liu H, Liu G, Wang S, et al. 2018. Distribution of heavy metals, stable isotope ratios ($\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{15}\text{N}$) and risk assessment of fish from the Yellow River Estuary, China. *Chemosphere*, **208**: 731–739.
- Luo RX, Zhuo XY, Ma D, et al. 2014. Determination of 33 elements in scalp hair samples from inhabitants of a mountain village of Tonglu city, China. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, **104**: 215–219.
- Ni SQ, Li RP, Wang AJ, et al. 2011. Heavy metal content in scalp hair of the inhabitants near Dexing Copper Mine, Jiangxi Province, China. *Science China-Earth Sciences*, **54**: 780–788.
- Njati SY, Maguta MM. 2019. Lead-based paints and children's PVC toys are potential sources of domestic lead poisoning: A review. *Environmental Pollution*, **249**: 1091–1105.
- Oyoo-okoth E, Admiraal W, Osano O, et al. 2010. Monitoring exposure to heavy metals among children in Lake Victoria, Kenya: Environmental and fish matrix. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, **73**: 1797–1803.
- Qu WJ, Wang CJ, Luo M, et al. 2020. Distributions, quality assessments and fluxes of metals carried by submarine groundwater discharge in different types of wetlands in Jiaozhou Bay, China. *Marine Pollution Bulletin*, **157**: 111310.
- Rasheed H, Iqbal S, Ullah H, et al. 2021. Analysis of heavy metals as toxic elements in cosmetics available at local markets of Quetta, Balochistan, Pakistan. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, DOI: 10.1080/03067319.2020.1850707.
- Skalna AV, Skalnaya MG, Serebryansky EP, et al. 2018. Comparative hair trace element profile in the population of Sakhalin and Taiwan pacific islands. *Biological Trace Element Research*, **184**: 308–316.
- Susan A, Ragendran K, Sathyasivam K, et al. 2019. An overview of plant-based interventions to ameliorate arsenic toxicity. *Biomedicine Pharmacotherapy*, **109**: 838–852.
- Xie WS, Ping C, Wang HT, et al. 2017. Health risk assessment of trace metals in various environment media, crops and human hair from a mining affected area. *International Journal of Environmental Research Public Health*, **14**: 1595.
- Zhang X, Yang L, Li YH, et al. 2012. Impacts of lead, zinc mining and smelting on the environment and human health in China. *Environmental Monitoring and Assessment*, **184**: 2261–2273.
- Zhou SS, Yuan H, Ma X. 2017. Hair chemical element contents and influence factors of reproductive age women in the west ujimqin banner, Inner Mongolia, China. *Chemosphere*, **166**: 528–539.
- Zukowska J, Biziuk M. 2008. Methodological evaluation of method for dietary heavy metal intake. *Journal of Food Science*, **73**: 21–29.
-
- 作者简介 李 渊,男,1994年生,硕士研究生,主要研究方向为职业卫生与环境卫生。E-mail: liyuanstars@163.com
责任编辑 魏中青
-

李渊,王川,冯琳,丁丽,杨劲晨,李军,李平. 2021. 青岛地区水产品重金属含量及居民重金属暴露风险. 生态学杂志, **40**(11): 3720–3729.

Li Y, Wang C, Feng L, Ding L, Yang SC, Li J, Li P. 2021. Heavy metal concentrations in aquatic products and health risk of human exposure in Qingdao City. *Chinese Journal of Ecology*, **40**(11): 3720–3729.