

江苏某地区稻虾蟹综合种养模式下养殖水和产品中农药残留与风险评价

徐志华, 任娣, 刘崇万, 刘熠, 葛筱琴, 胡月, 朱晓华

引用本文:

徐志华, 任娣, 刘崇万, 刘熠, 葛筱琴, 胡月, 朱晓华. 江苏某地区稻虾蟹综合种养模式下养殖水和产品中农药残留与风险评价[J]. *农业环境科学学报*, 2024, 43(1): 37-47.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2023-0183>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

山西省番茄中农药与重金属污染特征及膳食摄入风险评估

马新耀, 王静, 朱九生, 李伟

农业环境科学学报. 2021, 40(7): 1432-1440 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0199>

江苏典型斑点叉尾(*Ictalurus punctatus*)养殖区多环芳烃生态风险及健康风险评价

徐志华, 刘熠, 刘崇万, 任娣, 耿雪冰, 葛筱琴, 朱晓华

农业环境科学学报. 2021, 40(10): 2198-2207 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0201>

长三角地区池塘养殖水产品重金属含量及其健康风险评价

和庆, 彭自然, 张晨, 杨丰源, 李娟英

农业环境科学学报. 2017, 36(6): 1070-1077 <https://doi.org/10.11654/jaes.2016-1594>

桂林会仙湿地表层土壤中有机氯农药污染现状

程铖, 刘威杰, 胡天鹏, 邢新丽, 毛瑶, 石明明, 许安, 苏业旺, 李星谕, 余海阔, 祁士华

农业环境科学学报. 2021, 40(2): 371-381 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0751>

设施番茄和黄瓜田土壤中农药残留及其对蚯蚓的急性风险

姜林杰, 耿岳, 王璐, 彭祎, 刘海军, 徐亚平, 刘潇威

农业环境科学学报. 2019, 38(10): 2278-2286 <https://doi.org/10.11654/jaes.2019-0275>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

徐志华, 任娣, 刘崇万, 等. 江苏某地区稻虾蟹综合种养模式下养殖水 and 产品中农药残留与风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2024, 43(1):37-47.

XU Z H, REN D, LIU C W, et al. Pesticide residues and risk assessment in aquatic water and products under typical rice-crab and rice-shrimp integrated cultivation patterns in areas of Jiangsu Province[J]. *Journal of Agro-Environment Science* 2024, 43(1):37-47.



开放科学 OSID

江苏某地区稻虾蟹综合种养模式下 养殖水 and 产品中农药残留与风险评价

徐志华^{1,2}, 任娣^{1,2}, 刘崇万^{1,2}, 刘熠^{1,2}, 葛筱琴^{1,2}, 胡月^{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:为掌握江苏省某地区稻田综合种养基地内(“稻-蟹”及“稻-虾”)养殖水环境及水产品中的农药残留特征与生态风险及健康风险,利用三重四极杆气质联用仪(GC-MS/MS),选择6个养殖区,根据生长周期,跟踪监测养殖水环境及同期水产品(虾、蟹)中208种农药残留情况,并根据商值法对养殖水环境进行生态风险评价,利用食用安全风险指数对水产品进行食用安全分析。结果表明:综合种养模式下,水环境中检出农药的主要类型为除草剂、杀菌剂、植物生长调节剂等,平均质量分数为 $0.33 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$,同时有少量杀虫剂、杀螨剂、增效剂有检出;在整个生长周期内,稻虾、稻蟹农药残留的主要类型为除草剂、杀菌剂、杀虫剂和植物生长调节剂,平均质量分数为 $6.1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (以湿质量计)。养殖水环境中农药主要来源于养殖前期环境中残留或外源性污染,随着养殖时间延长,农药含量整体趋向于减少,通过对养殖水环境生态风险进行分析,发现各抽样点位联合风险商值(RQ)均在0~1之间,属于中风险,对环境仍具有一定的压力,除草剂等类型农药应引起重视;在监测周期内,水产品中大部分农药的残留量逐渐减少直至未检出,仅有部分点位杀菌剂有少量存在,通过对同期虾、蟹的健康风险进行分析发现,平均食品安全指数远小于1,农药残留的食品安全风险可以接受。

关键词:稻-虾;稻-蟹;综合种养模式;农药残留;健康风险;生态风险

中图分类号:X714;X592 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2024)01-0037-11 doi:10.11654/jaes.2023-0183

Pesticide residues and risk assessment in aquatic water and products under typical rice-crab and rice-shrimp integrated cultivation patterns in areas of Jiangsu Province

XU Zhihua^{1,2}, REN Di^{1,2}, LIU Chongwan^{1,2}, LIU Yi^{1,2}, GE Xiaojin^{1,2}, HU Yue^{1,2}, ZHU Xiaohua^{1,2*}

(1. Freshwater Fisheries Research Institute of Jiangsu Province, Nanjing 210017, China; 2. Aquatic Products Analysis and Testing Center of Jiangsu Province, Nanjing 210017, China)

Abstract: In this study, we sought to evaluate the residual levels of pesticides and their ecological and health risks in typical comprehensive planting and breeding demonstration areas (“rice-crab” and “rice-shrimp”) in selected areas of Jiangsu Province. Triple quadrupole gas chromatography-mass spectrometry was used to track and monitor 208 pesticide residues in samples collected in six aquaculture areas. Furthermore, we used the entropy value method and food safety index to conduct ecological risk assessment of aquaculture water and a health risk assessment of aquatic products, respectively. The results showed that the main types of pesticides detected in the aquatic environment were herbicides, fungicides, and plant growth regulators, with an average mass fraction of $0.33 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$. Collectively, the amounts of herbicides, fungicides, and plant growth regulators accounted for 90% of the total pesticides, with the remainder being contributed by smaller amounts of pesticides such as acaricides and synergists. The average mass fraction of pesticides (herbicides, fungicides, insecticides, and plant growth regulators) detected in aquatic products was $6.1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (wet). At the pre-culture

收稿日期:2023-03-13 录用日期:2023-06-12

作者简介:徐志华(1985—),女,江苏连云港人,硕士,高级工程师,研究方向为水产品质量安全检测。E-mail:243188769@qq.com

*通信作者:朱晓华 E-mail:xhz824@sina.com

基金项目:国家重点研发计划项目(2020YFD0900300);江苏现代农业(大宗鱼)产业项目(JATS[2022]371)

Project supported: National Key Research and Development Program of China (2020YFD0900300); Jiangsu Agriculture Industry Technology System ([2022]371)

stage, the sources of pesticides in the aquaculture aquatic environment were residual or exogenous pollution. With a prolongation of breeding time, the contents of these pesticides will decline. The ecological risks of aquaculture water were all assessed to be medium, and the risk entropy of each sampling point was between 0 and 1. Particular attention should be paid to herbicides and other pesticides, as these have a certain pressure on the ecological environment. In the monitoring cycle, the trend of the residual amounts of most pesticides in aquatic products was similar to that of changes in the aquatic environment, gradually decreasing until becoming undetectable. However, we detected the presence of small amounts of fungicides at some sites. Analysis of the health risks to shrimps and crabs during the same period revealed that the average of food safety index was considerably less than 1, thereby indicating that the food safety risk of pesticide residues at the monitored sites was acceptable.

Keywords: rice-shrimp; rice-crab; comprehensive planting and breeding mode; pesticide residue; health risk; ecological risk

发展渔农结合的复合生态农业是现代农业的发展方向。稻渔综合种养就是将水稻种植和水产等水生动物养殖有机结合,通过构建复合生态系统,实现水产养殖业的可持续发展^[1-2]。常见的共作模式有稻鱼、稻蟹、稻虾等,其模式既能提升稻田单位面积效益,又能减少化肥农药的使用量,实现经济和生态效益双丰收^[3]。据统计,2021年江苏省稻渔综合种养面积达到22.7万hm²,水产品产量达到38.0万t,产量与种养面积均居全国第五^[4],目前江苏综合种养以稻虾为主,稻蟹主要集中在泰州、苏州等地。虾、蟹对农药十分敏感,因此稻田不能大量使用农药治虫。研究表明2020年中国稻渔综合种养产业农药使用量普遍减少30%以上^[4];王强盛等^[5]的研究表明稻田种养体系下化学农药节省40%~50%,实现了绿色高效生产方式。由于水稻病害防治的需要,综合种养生产过程中不能完全杜绝农药的使用。刘巧荣等^[6]对江苏稻田养殖区农药残留情况调查发现在中华绒螯蟹中检出DDT;张皓然等^[7]对江苏单、双季稻种植区土壤农药残留情况的调查发现,有13种农药在土壤中被检出。

目前我国对水产品的质量安全主要关注兽药残留,对有关环境和水产品中农药残留并未引起足够重视,尤其是不同种类农药同时测定的研究更少。为全面掌握江苏省稻田综合种养示范区内水产品及其养殖水环境中农药残留情况,在全省“稻-蟹(中华绒螯蟹)”及“稻-虾(克氏原螯虾)”(以下简称稻蟹、稻虾)综合种养基地内共选择6家示范基地,每个基地选取3个塘口;根据生长周期,从3月份开始放苗,稻虾6月份、稻蟹9月份为终点,稻虾每10d监测一次(3—6月份),稻蟹每个月监测一次(3—9月份),同时取养殖塘的养殖水,利用三重四极杆气质联用仪分析同期虾、蟹产品及养殖环境水中208种农药残留情况,并根据生态风险和食用安全风险进行安全评价,以期了解江苏某地区稻虾、稻蟹综合种养模式下农药的潜在风险。

1 材料与方 法

1.1 仪器与设备

采集设备:多参数水质分析仪(美国YSI);柱状采泥器(北京普雷德仪器设备有限公司)。

前处理设备:Dionex ASE 350加速溶剂萃取仪(美国戴安公司);R-200旋转蒸发仪(瑞士步琦公司);Allegra™ 21R台式高速冷冻离心机(美国Beckman公司);XW-80A微型涡旋混合仪(上海沪西分析仪器厂);Elix 5+Milli-Q Academic纯水仪(美国Millipore公司);N-EVAPTM111氮吹仪(美国Organomation公司);JP-070S超声波清洗器(深圳洁盟有限公司);Turbovap II全自动浓缩工作站(英国Caliper公司);AE200电子天平(感量0.0001g,瑞士梅特勒-托利多公司);JY5002电子天平(感量0.01g,上海精天电子仪器厂);Agela/VM24真空固相萃取装置。

样品分析设备:TSQ 9000 MS and TRACE 1300三重四极杆气质联用仪(美国赛默飞世尔科技)。

1.2 药品与试剂

乙酸乙酯中113种农药混标溶液(氟丙菊酯、艾氏剂、丙硫磷、哒嗪硫磷、噻霉胺、皮蝇磷、西玛津、四氯硝基苯、特丁津、特丁草净、Z-杀虫畏、四氟醚唑、虫线磷、甲基立枯磷、毒壤磷、莠灭净、莠去通、莠去津、益棉磷、氟丁酰草胺、苯霜灵、氟草胺、 β -六六六、甲羧除草醚、联苯、乙基溴硫磷、丁草胺、抑草磷、克百威、反-氯丹(γ)、杀螨酯、毒虫畏、乙酯杀螨醇、地茂散、氯苯胺灵、毒死蜱、甲基毒死蜱、异噁草酮、蝇毒磷、氟氯氰菊酯、环丙唑醇、啉菌环胺、 δ -六六六、敌草净、二嗪磷、禾草灵(甲酯)、百治磷、狄氏剂、苯醚甲环唑、(E)-烯唑醇、二苯胺、异丙净、硫草敌、乙硫磷、乙氧呋草黄、乙螨唑、土菌灵、乙嘧硫磷、伐灭磷、腈苯唑、杀螟硫磷、仲丁威、甲氰菊酯、倍硫磷砒、倍硫磷亚砒、氟虫腈、吡氟禾草灵-丁基、氟氰戊菊酯、咯菌腈、三氟硝草醚、氟啶唑、氟胺氰菊酯、 γ -六六六、己唑

醇、异菌脲、氯唑磷、水胺硫磷、氧异柳磷、稻瘟灵、高效氯氟氰菊酯、溴苯磷、马拉氧磷、马拉硫磷、苯噻酰草胺、杀扑磷、烯虫酯、4,4'-甲氧滴滴涕、绿谷隆、腈菌唑、二溴磷、敌草胺、除草醚、2,4'-滴滴伊、氧乐果、噁霜灵、4,4'-滴滴涕、多效唑、甲基对硫磷、二甲戊灵、五氯苯胺、五氯硝基苯、甲拌磷、伏杀硫磷、硫环磷、亚胺硫磷、磷胺、啉啉磷、腐霉利、丙溴磷、扑草净、炔苯酰草胺、敌稗、丙环唑) $100 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ (天津阿尔塔科技有限公司);乙酸乙酯中109种农药混标溶液(乙酰甲胺磷、乙草胺、禾草丹、三唑酮、三唑醇、野麦畏、三唑磷、肟菌酯、乙烯菌核利、除线磷、敌噁磷、苯草醚、甲草胺、烯丙菊酯、 α -六六六、 α -硫丹、莎稗磷、莠去津-脱乙基、 β -硫丹、联苯菊酯、啶酰菌胺、除草定、溴苯烯磷、溴硫磷、溴螨酯、乙嘧酚磺酸酯、三硫磷、虫螨磷、环草特、环氟菌胺、氯氰菊酯、脱叶磷、溴氰菊酯、敌草腈、敌敌畏、氯硝胺、三氯杀螨醇、乐果、灭菌磷、敌瘟磷、异狄氏剂、苯硫磷、氟环唑、乙丁烯氟灵、灭线磷、咪唑菌酮、氯苯嘧啶醇、苯硫威、丰索磷、倍硫磷、氰戊菊酯、氟酰胺、地虫硫磷、安果磷、噻唑磷、六氯苯、环嗪酮、抑霉唑、异稻瘟净、异柳磷、甲基异柳磷、异丙威、噁唑磷、醚菌酯、啉菌胺、地胺磷、甲霜灵、E-虫螨畏、甲胺磷、异丙甲草胺、噻草酮、速灭磷、禾草敌、久效磷、2,4'-滴滴涕、2,4'-滴滴涕、噁草酮、乙氧氟草醚、4,4'-滴滴涕、4,4'-滴滴伊、乙基对氧磷、甲基对氧磷、对硫磷、戊菌唑、氯菊酯、甲拌磷砒、甲拌磷亚砒、增效醚、啶草磷、抗蚜威、甲基嘧啶磷、丙草胺、环丙氟灵、扑灭津、胺丙畏、残杀威、吡啶磷、吡螨灵、吡丙醚、啶硫磷、啶氧灵、治螟磷、戊唑醇、吡螨胺、丁基嘧啶磷、特丁硫磷、特丁硫磷砒、三氯杀螨砒、胺菊酯) $100 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ (天津阿尔塔科技有限公司);甲醇中外环氧七氯溶液 $100 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ (天津阿尔塔科技有限公司);环己烷、正己烷、乙酸乙酯、丙酮、二氯甲烷、乙腈、甲醇(色谱纯,美国Tedia公司);氧化铝填料(Al_2O_3)、石墨化炭黑填料(GCB)、十八烷基硅烷键合硅胶填料(C_{18})、乙二胺-N-丙基硅烷化硅胶填料(PSA)[天津博纳艾杰尔(Agela)]。

1.3 样品采集、制备及前处理

1.3.1 样品采集

选取6个示范基地(图1),每个示范基地选取3个塘口,根据水稻种植周期(6月份下旬开始,9月份下旬完成水稻收割),以及虾蟹生长周期,稻虾养殖时间段为3—6月份,稻虾为每10 d监测一次(3—6月份),稻蟹养殖时间段为3—9月份,稻蟹为每个月监

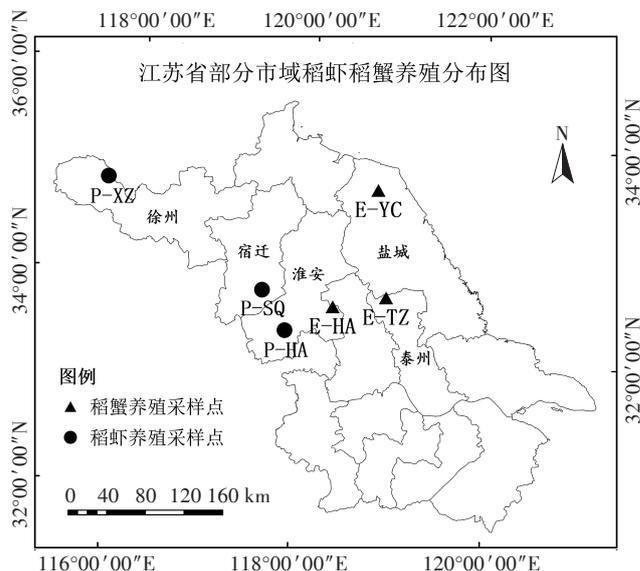


图1 样品抽样点位图

Figure 1 Sampling site

测一次(3—9月份),同时抽取同一池塘产品和养殖水,稻田水主要来源为外河灌溉水,共计153个样品。

1.3.2 样品制备

(1)养殖水:在养殖基地塘口随机5点取水样2 000 mL,混匀,过滤,待提取。

(2)产品:每个点位抽取样品2 kg,去壳取可食部分,用高速万能粉碎机打成匀浆,置于 $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 冰箱中冷冻贮存,测定前将其室温解冻。

1.3.3 样品前处理

(1)水样:固相萃取柱(HLB)预先依次用5 mL甲醇、5 mL二氯甲烷+正己烷(1:1)、5 mL乙酸乙酯、3 mL甲醇、10 mL超纯水淋洗,将水样以 $4.0\sim 6.0 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ 负压抽滤通过小柱,上样完毕后用10 mL超纯水淋洗小柱,抽干柱中残留水分,在柱下依次串联5 g无水硫酸钠柱和LC- NH_2 柱[预先用3 mL二氯甲烷+正己烷(1:1)和3 mL乙酸乙酯淋洗],依次用二氯甲烷10 mL+正己烷7 mL、乙酸乙酯7 mL洗脱并收集洗脱液,于 $40\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下氮气吹至近干,用乙酸乙酯定容至1 mL,加入 $100 \mu\text{L}$ $10 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的环氧七氯内标液,得到样品溶液,所述样品溶液采用气相色谱/串联三重四极杆质谱GC-MS/MS进行分析,

(2)产品:采用加速溶剂萃取(ASE)技术,称取5 g样品,与5 g硅藻土混合均匀,然后在萃取池(34 mL)中依次加入氧化铝(0.5 g)、石墨化炭黑(2 g)、十八烷基硅烷键合硅胶(1 g)、乙二胺-N-丙基硅烷化硅胶(1 g)填料,最后用硅藻土填满萃取器,使用乙腈和二氯甲烷混合液(体积比1:2)作为提取溶剂,系统压力

10.3 MPa, 加热 5 min, 温度 100 °C, 静态提取 5 min, 冲洗体积为 60%, 循环 2 次。萃取液于 40 °C 水浴下氮气吹至近干, 加入 100 μL 10 mg·L⁻¹ 的环氧七氯内标液, 用乙酸乙酯定容至 1 mL, 得到样品溶液, 将所述样品溶液采用气相色谱/串联三重四极杆质谱 GC-MS/MS 进行分析。

1.4 质量控制

建立基质标准曲线(内标法定量), 浓度在 0.01~0.50 mg·L⁻¹ 范围内, 加入 100 μL 10 mg·L⁻¹ 的环氧七氯内标液, 配制系列基质混合标准溶液, 供上机测定。以农药定量离子峰面积和内标物定量离子峰面积的比值为纵坐标、农药标准溶液质量浓度和内标物质浓度的比值为横坐标, 绘制标准曲线, 相关系数范围 0.95~0.99 之间。方法检出限以 3 倍信噪比计算得到, 检测限范围: 产品为 0.23~9.88 μg·kg⁻¹, 水样为 0.5~1.0 ng·L⁻¹。以样品(空白水样、克氏原螯虾、中华绒螯蟹)作为样本进行添加实验, 添加水平在 0.01~0.05 mg·kg⁻¹ 和 0.1~0.001 mg·L⁻¹, 回收率在 51.7%~129.1% 之间, 相对标准偏差在 0.39%~14.12% 之间。

为验证方法的可靠性, 用空白样品和平行样品对处理和测定过程进行质量控制与保证。

1.5 仪器工作条件

色谱条件: HP 5-MS (30 m×0.25 mm×0.25 μm); 进样口温度 270 °C; 载气为 99.999% 高纯氦气; 不分流进样, 进样量 1 μL; 流量 1.2 mL·min⁻¹; 柱升温程序为初始温度 40 °C, 保持 1.5 min, 以 25 °C·min⁻¹ 升至 90 °C, 保持 1.5 min, 25 °C·min⁻¹ 升至 180 °C, 5 °C·min⁻¹ 升至 280 °C, 10 °C·min⁻¹ 升至 300 °C 保持 5 min。

质谱条件: EI 源; 离子源温度 300 °C; 传输线温度 280 °C; 采集方式为 Time-SRM。

1.6 风险评价方法

1.6.1 生态风险评价

本研究采用商值法^[8]来评估目标农药在水产养殖环境中残留对生态系统的潜在风险, 该方法广泛应用于评估环境中农药潜在生态风险。风险商值(RQ 值)可以分为 3 个污染等级: 0.01≤RQ<0.1 为低风险; 0.1≤RQ<1 为中等风险; RQ≥1 为高风险。RQ 值值易于说明污染风险程度。

RQ 值按式(1)计算:

$$RQ = \frac{MEC}{PNEC} \quad (1)$$

式中: MEC 为实测环境浓度, μg·kg⁻¹ 或 μg·L⁻¹; PNEC 是指用于农药的预测无效应浓度, μg·kg⁻¹ 或 μg·L⁻¹。

$$PNEC_{\text{water}} = \frac{EC_{50}}{AF} \quad (2)$$

式中: EC₅₀ 为急性毒性参考因子——半数最大效应浓度, mg·L⁻¹; AF 为评估因子, 欧盟《关于风险评价技术导则文件》指出^[9], AF 根据毒性数据情况选取, 当采用急性毒性数据 EC₅₀ 时, AF 取值为 1 000, 当采用慢性毒性数据 NOEC 时, AF 取值为 100, 故本研究 AF 取值为 1 000。为了最大化估计水产养殖环境中农兽药的影响, 从相关文献中选择现有研究中目标农兽药的毒性数据, 基于最坏情况考虑, 筛选出敏感水生物种的 PNEC 值以计算 RQ 养殖水环境中农药生态风险评估参数, 结果如表 1 所示。

1.6.2 健康风险评价方法

本文采用李聪等^[10]的食品安全指数法。

$$IFS_c = \frac{EDI_c \cdot f}{S_{ci} \cdot bw} \quad (3)$$

$$EDI_c = R_i \cdot F_i \cdot E_i \cdot P_i \quad (4)$$

$$\overline{IFS} = \frac{\sum_{i=1}^n IFS_{ci}}{n} \quad (5)$$

式中: C 为农药, i 为中华绒螯蟹或小龙虾; R_i 为农药的残留水平, mg·kg⁻¹; F_i 为估计日消费量, g·人⁻¹·d⁻¹, 据城乡居民水产日消费量 29.6 g·d⁻¹^[11] 和长三角城市日消费水产品量^[12], 本研究中华绒螯蟹取 10.0 g·人⁻¹·d⁻¹, 克氏原螯虾取 8.3 g·人⁻¹·d⁻¹^[13]; E_i 为中华绒螯蟹、小龙虾的可食用部分因子, 取值为 1; P_i 为中华绒螯蟹、小龙虾的加工处理因子, 取值为 1; S_{ci} 为安全摄入量, 采用每日允许摄入量(ADI)^[14]; bw 为平均体质量, 取值为 61.5 kg^[15]; f 为校正因子, 采用 ADI、RfD、PTDI 等日摄入量数据, f 取值为 1; IFS 为 i 中 n 种农药残留食品安全指数值的平均值。安全指数远小于 1, 农药对食品安全没有影响; 安全指数小于或等于 1, 农药对食品安全影响的风险可以接受; 安全指数大于 1, 农药对食品安全影响的风险超过可接受限度。

1.7 数据处理及制图

采用 Excel 2007、Origin2018 和 ArcGIS 进行数据处理和制图。

2 结果与讨论

2.1 养殖水中农药残留特征

在 6 个抽样点位, 稻虾蟹综合种养水环境中, 208 种农药共检测出 5 种类型农药(表 2、图 2), 主要类型为除草剂、杀菌剂、杀虫剂、杀螨剂和植物生长调剂剂。Σ₁₃ 除草剂、Σ₁₄ 杀菌剂、Σ₆ 杀虫剂、Σ₄ 杀螨剂、Σ₁ 增效剂和 Σ₁ 植物生长调节剂平均质量分数(以中

表1 水体中农药生态风险评估参数

Table 1 Ecological risk parameters of pesticides in water

| 农药 Pesticide | 敏感物种 Sensitive species | 半最大效应浓度 $EC_{50}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$ | 水无效应浓度 $PNEC_{\text{water}}/(\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1})$ |
|--------------------------|---|---|--|
| 敌草腈 Dichlobenil | Daphnia magna | 6.2 ^a | 6.2 |
| 扑草净 Prometryn | Daphnia magna | 12.66 ^a | 12.66 |
| 二甲戊灵 Pendimethalin | Algae | 0.147 ^b | 0.147 |
| 异丙甲草胺 Metolachlor | Daphnia magna | 23.5 ^a | 23.5 |
| 莠灭净 Ametryne | Daphnia magna | 28.0 ^a | 28 |
| 乙草胺 Acetochlor | Daphnia magna | 8.30 ^b | 8.3 |
| 吡氟禾草灵 azifop-P-butyl | Danio rerio | 1.96 ^b | 1.96 |
| 禾草灵 Diclofop methyl | Daphnia magna | 0.23 ^b | 0.23 |
| 莠去津 Atrazine | Raphidocelis subcapitata | 85 ^b | 85 |
| 除草醚 Nitrofen | Brachionus calceolarius | 0.036 6 ^b | 0.036 6 |
| 丙草胺 Pretilachlor | Raphidocelis subcapitata | 0.119 ^b | 0.119 |
| 扑灭津 Propazine | Daphnia magna | 12.66 ^a | 12.66 |
| 噁草酮 Oxadiazon | Daphnia magna | 1.78 ^b | 1.78 |
| 联苯 Biphenyl | Daphnia magna | 2.93 ^b | 2.93 |
| 丙环唑 Propiconazole | Daphnia magna | 10.2 ^a | 10.2 |
| 己唑醇 Hexaconazole | Daphnia magna | 4 ^b | 4.0 |
| 戊唑醇 Tebuconazole | Daphnia magna | 4 ^b | 4 |
| 三唑酮 Triadimefon | Daphnia magna | 1.99 ^b | 1.99 |
| 氟环唑 Epoxiconazole | Analytical grade | 7.99 ^b | 7.99 |
| 苯醚甲环唑 Difenconazole | Microcystis aeruginosa (Blue-Green Algae) | 20 ^a | 20 |
| 稻瘟灵 Isoprothiolane | Pseudokirchneriella subcapitata (Algae) | 4.58 ^a | 4.58 |
| 咪唑菌酮 Fenamidone | Raphidocelis subcapitata (Green Algae) | 0.82 ^a | 0.82 |
| 土菌灵 Etridiazole | Pseudokirchneriella subcapitata (Algae) | 4.9 ^b | 4.9 |
| 甲霜灵 Metalaxyl | Daphnia magna (Water Flea) | 3.47 ^a | 3.47 |
| 苯霜灵 Benalaxyl | Daphnia magna (Water Flea) | 0.59 ^a | 0.59 |
| 肟菌酯 Trifloxystrobin | Daphnia magna (Water Flea) | 3.2 ^b | 3.2 |
| 环嗪酮 Hexazinone | Anabaena inaequalis (Blue-Green Algae) | 2.867 ^b | 2.867 |
| 甲氰菊酯 Fenprothrin | Daphnia magna (Water Flea) | 2.00 ^a | 2 |
| 联苯菊酯 Bifenthrin | Daphnia magna (Water Flea) | 6.2 ^a | 6.2 |
| 溴苯烯磷 Bromfenphos | Cyprinus carpio | 0.75 ^a | 0.75 |
| 苯硫磷 Phosphonothioic Acid | Algae | 1.00 ^a | 1.0 |
| 伏杀硫磷 Phosalone | Green Algae | 367.802 ^b | 367.802 |
| 毒壤磷 Trichloronate | Algae | 1.0 ^b | 1.0 |
| 杀螨酯 Chlorfenson | Lepomis macrochirus Bluegill | 3.10 ^b | 3.1 |
| 乙酯杀螨醇 Chlorobenzilate | Daphnia magna (Water Flea) | 1.40 ^b | 1.4 |
| 乙螨唑 Etoxazole | Oreochromis niloticus Nile Tilapia | 1.35 ^b | 1.35 |
| 吡螨胺 Tebufenpyrad | Daphnia magna (Water Flea) | 0.046 ^b | 0.046 |
| 增效醚 Piperonyl butoxide | Daphnia magna (Water Flea) | 2.83 ^a | 2.83 |
| 多效唑 Paclbutrazol | Daphnia magna (Water Flea) | 33.20 ^a | 33.2 |

注:^a英国农药性质数据库 (PPDB);^b美国环保局生态毒理 (ECOTOX) 数据库。

Note: a. Pesticide Properties DataBase; b. ECOTOX Database USEPA.

位数表示) 为 54.1、190.9、9.3、9.6、12.2、24.6 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。其中除草剂、杀菌剂和植物生长调节剂为农药检出主要物质, 约占农药检出总量的 90%, 另外有少量杀虫剂、杀螨剂、增效剂被检出。除草剂中检出率较高的

是二甲戊灵、敌草腈、扑草净、禾草灵、异丙甲草胺、莠灭净, 检出率在 85.0%~98%, 平均质量分数为 0.9~9.2 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 这 6 种除草剂范围为 11.1 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ~1.9 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 约占 13 种除草剂总量的 85.2%, 除以上 6 种除草剂

表2 综合种养模式下水环境中不同类型农药残留情况

Table 2 Different types of pesticide residues in aquaculture water under the integrated cultivation mode

| 农药 Pesticide | 中位数浓度 Median/ (ng·L ⁻¹) | 平均值 Mean±SD/ (ng·L ⁻¹) | 检出频率 Detection frequency/% |
|--|---|--|----------------------------------|
| Σ ₁₃ 除草剂 Herbicide | 54.1 | 119.6±532.8 | 100.0 |
| Σ ₁₄ 杀菌剂 Bactericide | 190.9 | 225.1±314.0 | 100.0 |
| Σ ₆ 杀虫剂 Insecticide | 9.3 | 25.3±47.4 | 100.0 |
| Σ ₄ 杀螨剂 Acaricide | 9.6 | 6.0±23.0 | 100.0 |
| Σ ₁ 增效剂 Synergist | 12.2 | 12.0±10.6 | 24.8 |
| Σ ₁ 植物生长调节剂 Plant growth regulator | 24.6 | 38.7±78.0 | 92.8 |
| Σ 农药 Total | 332.7 | 391.6±619.2 | 100.0 |

外,还含有少量的除草醚、乙草胺、丙草胺等被检出。杀菌剂中检出率较高的有稻瘟灵、联苯、丙环唑、戊唑醇、肟菌酯,检出率在90%以上,5种杀菌剂平均质量分数为 $3.6 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1} \sim 0.7 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,占14种除草剂总量的72.1%。杀虫剂有甲氧菊酯(检出率7.8%)、联苯菊酯(检出率5.2%)等少量物质被检出,检出率低且含量较小。杀螨剂有吡螨胺、乙酯杀螨醇、杀螨酯、乙螨唑少量物质被检出,4种杀螨剂总质量分数范围为 $\text{ND} \sim 52.1 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。黄晓丽等^[16]对哈尔滨地区养殖池塘表层水体中7种除草剂进行了调查,发现除草剂含量在 $\text{ND} \sim 1\ 671.30 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,莠去津、丙草胺、丁草胺和乙草胺在3种环境介质中的检出率为100%;王守英^[17]对上海崇明22个养殖基地池塘水中87种农药进行调查,农药含量范围为 $0.60 \sim 9\ 943 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,污染物主要为多菌灵、扑草净、氟虫腈的代谢产物等;刘洋锋等^[18]在上海14个水产养殖场水环境中筛查出70种农兽药;孙秀梅等^[19]调查了温州某区域养殖水环境中10种拟除虫菊酯,发现水体中菊酯类农药介于 $\text{ND} \sim 0.92 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 。水稻田使用的农药统计数据^[20]显示,杀虫剂占45.6%、杀菌剂占27.0%、除草剂占25.6%、植物生长调节剂占1.9%。通过实际走访并查阅农药使用记录发现,在水稻栽种前,养殖户会使用部分农药除去田间杂草等,在稻虾蟹整个生长期,养殖户会严格按照江苏省绿色防控产品目录,仅在必要时使用部分生物农药及复配剂。徐炜枫^[21]对江苏水稻田农药面源污染状况调查发现,江苏对水稻稻曲病防治的主要药剂有己唑醇、戊唑醇、烯唑醇等复配制剂,农户选用的较多,肟菌酯、烯肟菌胺作为新药在江苏的推广力度比较大,这也与本文杀菌剂主要以稻瘟灵、丙环唑、戊唑醇、肟菌酯的结论相似。值得注意的是本次环境中检

出的部分物质如除草醚等,我国在2001年就停止生产、销售、使用,查阅基地农药台账也未发现使用此类药物,说明养殖环境中部分农药的残留应为环境残留所导致,张石云等^[22]也得出哈尼梯田的除草醚残留为前期残留的结论。

为进一步分析,本文把水环境中稻虾和稻蟹农药残留以农药不同类型进行分类,分为除草剂、杀菌剂、杀虫剂、除螨剂、植物生长调节剂。由图2(a)可知,稻虾组出现随着养殖时间的延长,农药残留量逐渐减少的趋势,由于水稻的生长周期在6月下旬至10月,稻蟹养殖在3—6月份,不处于水稻生长期,水稻还没有种植,推测农田里的主要残留为灌溉水外源性污染或前期农田使用农药残留,通过查询养殖基地农药使用台账,未发现使用该类农药情况,也验证了上文的推测。

稻蟹生长周期为3—9月底,与水稻种植期6—10月份部分重合,从3月份开始监测稻蟹组农药使用情况,发现稻蟹组除草剂、植物生长调节剂也出现逐渐下降的趋势,但从7月份开始杀菌剂、杀虫剂、杀螨剂等含量没有随着时间的推移减少,反而增加,由于6月底开始种植水稻,随着温度的升高,水稻植物病害开始发生,根据绿色防控产品目录,养殖户开始使用一些农药如稻瘟灵、己唑醇、戊唑醇等防治水稻病虫害,因此在图2(b)上体现出养殖水中杀菌剂等药物含量的明显增加,随着养殖后期用药量减少,含量也逐渐降低。在3月份稻蟹组除草剂、杀菌剂含量整体略高于稻蟹组,其余几种农药类型在水环境中的农药残留无明显差异。

为具体分析稻蟹、稻虾养殖点位在抽样周期水环境中的农药残留变化,在各个采样点位计算每个月农药检出平均残留水平(稻虾为3、4、5、6月份,稻蟹3、5、7、9月份),稻蟹组的养殖水环境农药残留量整体上比稻蟹组的高一些,这可能与各个养殖基地本底残留有一定的关联(图2c)。各个抽样点位也是在采样初期农药残留量最高,随着养殖时间延长,农药整体残留量也在减少,农药残留量有随时间推移,逐年递减的规律^[23]。

2.2 稻虾、稻蟹中农药残留特征

在对水环境监测208种农药的同时,本研究抽取了相对应养殖塘中螃蟹和小龙虾的样品,共检出4种类型农药(表3),检测率为72.7%,平均质量分数为 $6.1 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,主要类型为除草剂、杀菌剂、杀虫剂和植物生长调节剂。 Σ_7 除草剂、 Σ_8 杀菌剂、 Σ_2 杀虫剂和

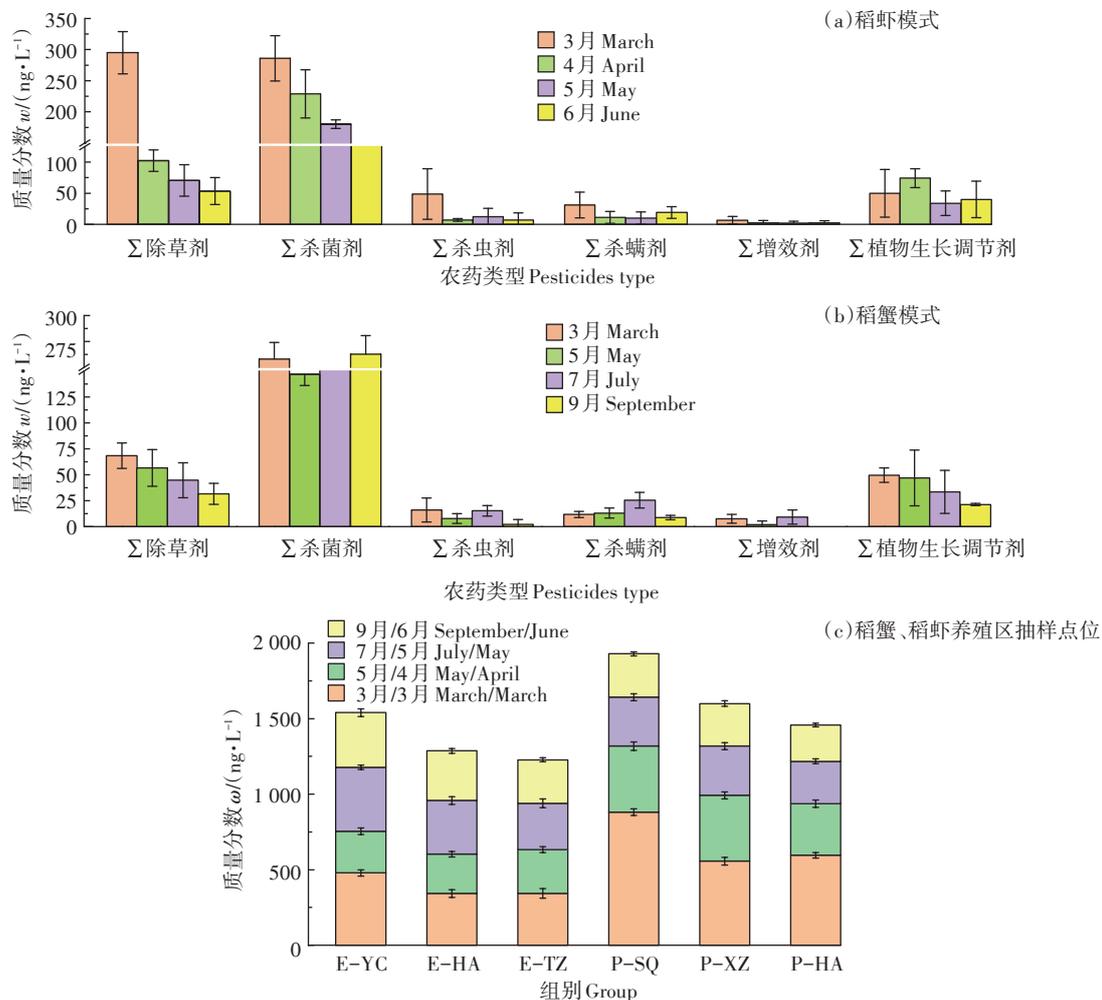


图2 稻虾模式和稻蟹模式养殖水环境农药残留

Figure 2 Pesticide residues in the aquatic water of rice shrimp and rice crab farming

Σ_i 植物生长调节剂的平均质量分数为1.1、1.8、5.9、1.2 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,检测率分别为20.4%、71.6%、24.5%、8.0%。除草剂中扑草净、二甲戊灵、异丙甲草胺、禾草灵、莠去津等少量被检出,检出率在8.8%~14.0%,质量分数范围在0.6~8.5 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。杀菌剂中主要物质为联苯、己唑醇、戊唑醇、稻瘟灵,检出率在17.5%~71.6%,质量分数范围为0.6~56.6 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,其中稻瘟灵质量分数范围为ND~25.1 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,检出率为19.2%,在E-YC点位中一个塘口7月份最大质量分数达到25.1 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,养殖水环境中7月份杀菌剂残留的增大,也印证了水稻从7月份开始使用杀菌剂等相关药物以防治病虫害,在螃蟹体内的富集也说明了稻田水环境中的农药被生物体吸收,至于其代谢特征将是下一步研究的重点。在E-TZ点位检出戊唑醇,最高质量分数达到30.5 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,整个生长周期检出率在17.5%。杀虫剂仅在前期3、4月份稻虾体内被检出,稻虾体内杀虫剂主要为甲氰菊酯、联苯菊酯,范围在

表3 综合种养模式下虾、蟹中不同类型农药残留

Table 3 Different types of pesticide residues in shrimp and crab under the integrated cultivation mode

| 农药 Pesticide | 中位数浓度 Median/ ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$) | 平均值 Mean \pm SD/ ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$) | 检出频率 Detection frequency/% |
|--|--|---|----------------------------------|
| Σ_7 除草剂 Herbicide | 1.1 | 1.0 \pm 2.1 | 20.5 |
| Σ_8 杀菌剂 Bactericide | 1.8 | 4.8 \pm 9.4 | 71.6 |
| Σ_2 杀虫剂 Insecticide | 5.9 | 5.7 \pm 3.2 | 24.5 |
| Σ_i 植物生长调节剂 Plant growth regulator | 1.2 | 1.7 \pm 1.8 | 8.0 |
| Σ 农药 Total | 6.1 | 9.2 \pm 11.7 | 72.7 |

ND~13.0 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,检出率为24.5%,其中甲氰菊酯检出率为21.0%,范围在ND~11.2 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。联苯菊酯仅在P-XZ点位前期被检出,范围在ND~8.9 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,随着时间推移,5—6月份抽样周期内均没有检出,药物经过代谢,稻虾在出塘上市前体内未发现杀虫剂等相关药物,而在稻蟹体内一直没有检出。植物生长调节

剂仅增效醚一种物质在稻蟹体内少量检出,含量在 $ND\sim 4.33\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,检出率在10.5%。通过以上研究发现,选取的江苏综合种养区稻蟹在养殖期内主要以杀菌剂为主,另有少量除草剂残留。与本研究相比,东北三省稻蟹中农药残留种类存在差异,覃东立等^[24]的研究表明东北三省主要稻蟹养殖产区的中华绒螯蟹体内,以丁草胺、乙草胺、莠去津、噁草酮等除草剂为主,杀虫剂和杀菌剂的检出率较低,中华绒螯蟹体内农药的检出量为 $0.05\sim 256\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。这是因为南方气温较高,病虫害较重,导致杀菌剂等使用频繁,且不同季节所使用的农药种类有所不同。本研究中,稻蟹、稻虾中18种农药质量分数在 $ND\sim 66.7\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,黄晓丽等^[25]检出了东北养殖鲫鱼体内有机氯和拟除虫菊酯农药的含量在 $5.56\sim 191.58\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,孙秀梅等^[19]报道温州某区域贻贝等水产品中菊酯类农药残留量在 $0.01\sim 6.78\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,于志勇等^[26]报道北京市不同水产品市场4种常见淡水食用鱼体内25种农药的残留水平在 $2.7\sim 1\ 932\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。可见,水产品受农药污染是普遍性问题,应该予以重视。

与水环境农药残留相似,水产品中农药残留整体上也呈现出随着养殖时间的延长,农药残留量减少的趋势,具体见图3(a)和图3(b)。大部分农药残留减少至未检出,仅有部分点位有杀菌剂的存在。稻虾组除草剂、杀菌剂、植物生长调节剂在5、6月份逐渐减少,甚至检测不到(或低于检出限),从而呈现出随着养殖时间的延长,农药总残留逐渐减少的趋势。而稻蟹组由于整个生长期涵盖3—9月份,7月份开始,水稻种植开始使用杀菌剂等药物防治虫害,水环境中杀菌剂含量增加,从而稻蟹的杀菌剂残留也出现从7月份开始有少量增加的规律,呈现出稻田施用的农药在稻蟹体内蓄积的特征。从抽样点位可以观察到[图3(c)],稻虾组农药残留量整体也出现逐渐减少的趋势,而稻蟹组个别点位杀菌剂残留量不同,导致整体农药残留量无明显下降,甚至在E-TZ点位9月份出现明显增加的现象。稻虾与稻蟹组可能由于样本的品种差异,以及水稻施用农药时间不同,导致农药在两品种之间的富集效果并不同步,在以后的研究中需重点关注农药对虾蟹的吸收和代谢关联。

2.3 风险评估

2.3.1 生态风险评价

为评估农药残留对生态环境的影响,本文参照谭华东等^[27]的方法,考虑到农药的联合毒性^[18],水环境中农药的组合效应以 RQ 值总和计算,图4(a)显示各

抽样点位 RQ 总和均小于1, $P-SQ$ 点位最高也只有0.97,最低点E-TZ为0.31,可见生态风险范围均在0.1~1之间,属于中风险,对环境具有一定的压力,应该引起一定的重视。为详细分析是哪种类型农药对 RQ 值贡献较大,根据检出的农药类型制作了图4(b),发现 $RQ_{(\Sigma\text{除草剂})}$ 、 $RQ_{(\Sigma\text{杀菌剂})}$ 介于0.1~1之间,属于中风险; $RQ_{(\Sigma\text{杀虫剂})}$ 和 $RQ_{(\Sigma\text{杀螨剂})}$ 介于0.01~<0.1之间,属于低风险; $RQ_{(\Sigma\text{植物生长调节剂})}$ <0.01,对环境无生态风险。与其他几种农药类型 RQ 相比,除草剂对水环境生态风险贡献最大,除草剂中除草醚贡献最大,但其在环境中仅少量检出,且属于早期环境残留导致,近些年已停止使用。在各个抽样点位[图4(c)]水环境中检出的各种农药中,大部分 RQ 值远小于0.1,处于低风险,仅有除草醚、部分点位二甲戊灵、丙草胺、吡螨胺介于0.1~1之间,一定程度上表明这几种农药对养殖生态环境存在中等风险。综合种养模式下,环境中农药残

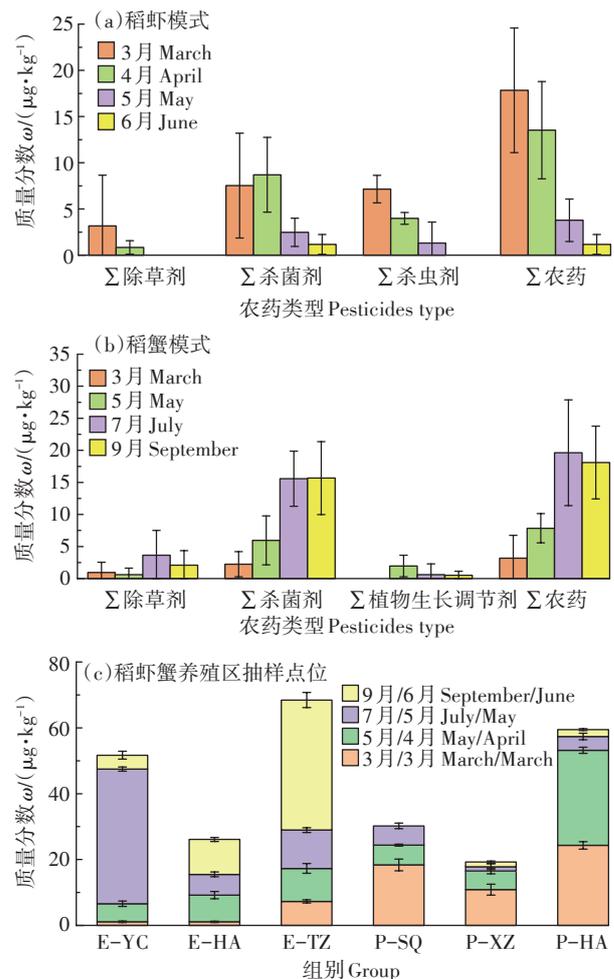


图3 稻虾、稻蟹模式下虾、蟹中农药残留

Figure 3 Pesticide residues in shrimp and crab under rice shrimp model and rice crab model

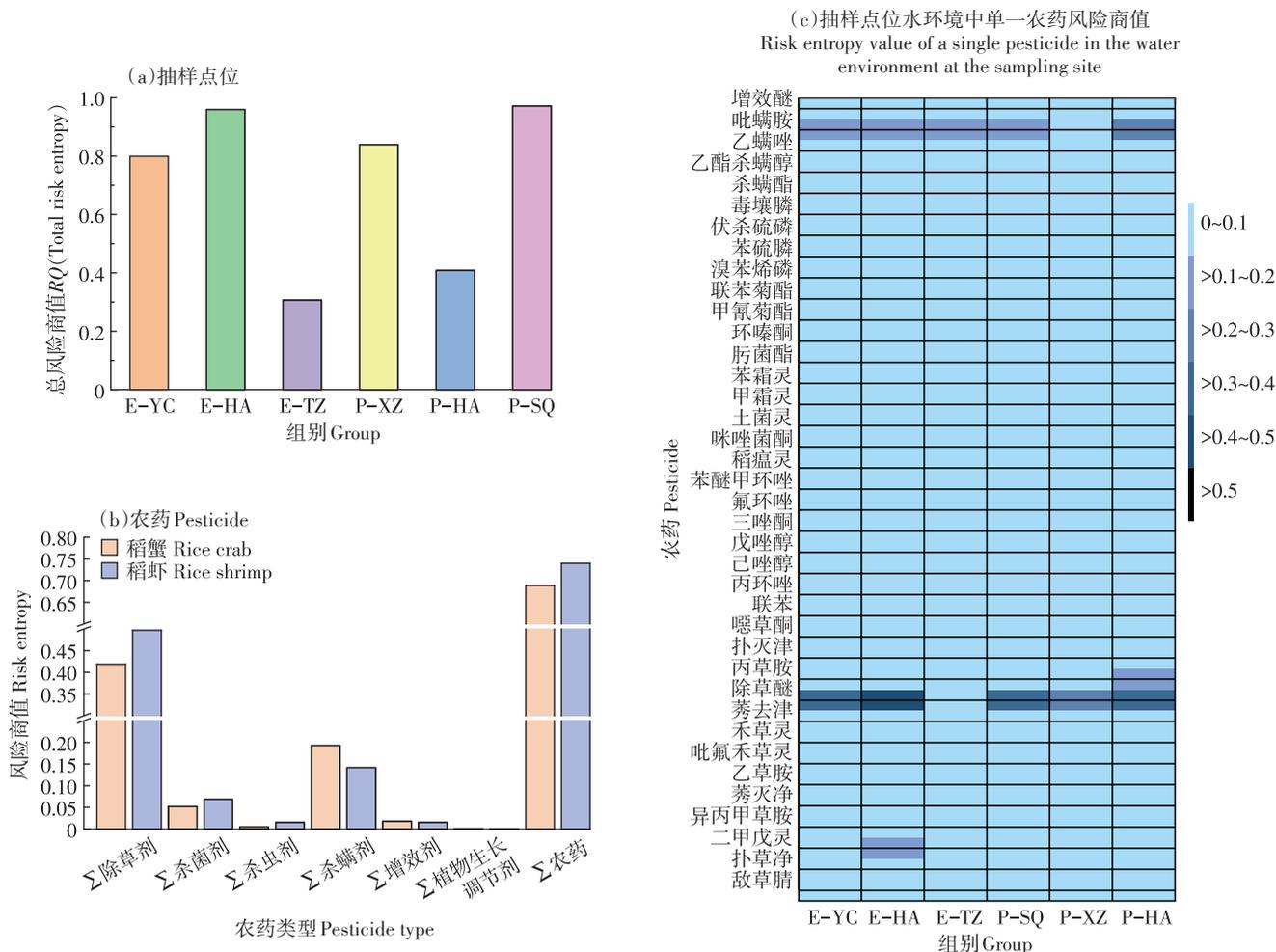


图4 水环境中农药风险商值

Figure 4 Risk entropy of pesticides in aquaculture water

留主要来自于前期环境残留,大部分农药对水环境生态风险属于低风险,部分农药为中风险,考虑到农药的联合毒性, RQ 总和可能要稍高于其实际生态风险,若长期暴露于风险中,仍然可能会导致生态系统的改变,最终通过食物链对人类健康产生风险,农药残留对环境产生的生态风险仍应引起重视,监管方尤其需要关注除草剂。近年来很多学者对养殖水环境农药残留风险进行了研究,刘洋峰等^[18]发现上海地区27个水产养殖场单个池塘的养殖环境的 RQ 值均大于1,生态风险均为高风险;张石云等^[22]通过对哈尼梯田稻鱼工作系统中除草剂的研究,发现梯田内除草剂的综合生态风险为高风险,莠去津和乙草胺是该产地生态风险贡献最大的除草剂;本研究综合种养模式下,农药造成的水体环境的污染相对较弱,可见该种模式减少了农药施用量,改善了稻区农业生态环境,促进了循环农业的发展,在经济效益与生态效益上实现了双赢。

2.3.2 稻虾、稻蟹中农药的健康风险评价

农药残留一方面对环境中的生物有所影响,另外也会迁移并污染周边环境,因此监管方应密切关注农药的残留水平,同时亟需开展其在环境-水生物-底泥中的迁移规律研究。为进一步了解同期水环境中农药残留是否在水产品体内富集,是否造成对人体的健康风险,本文同期开展了稻虾、稻蟹产品的健康风险评估。

根据《食品安全国家标准 食品中农药最大残留限量》(GB 2763—2021)^[14],查询到扑草净等农药的 ADI 值,并根据公式(3)计算出 IFS 。如图5所示,农药的食品安全指数均小于1,可见综合种养模式下,农药最大残留量的情况对食品安全的风险是可以接受的。利用可加和性对本次检出的农药的食品安全指数进行平均,稻蟹的 IFS 为0.048,对食用健康风险贡献较大的有己唑醇、戊唑醇、联苯菊酯;稻虾 IFS 为0.043,对食用健康风险贡献较大的有己唑醇、联苯菊酯、三唑醇;稻虾和稻蟹的食品安全指数远小于1,说

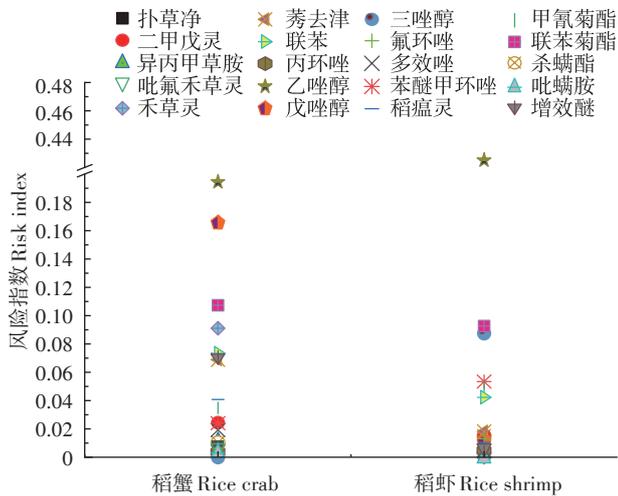


图5 稻虾、稻蟹中农药食品安全风险指数

Figure 5 Food safety risk index of pesticides in rice shrimp and rice crab

明消费人群的食品安全风险状态很好。虽然在7月份稻蟹使用了己唑醇、戊唑醇等杀菌剂,但是稻虾是6月份、稻蟹是10月份以后才开始上市,农药已经过一段时间的降解,所以相对来说,农药对稻虾、稻蟹的食用安全风险影响较小。覃东立等^[24]对东北稻渔综合种养模式下成品中华绒螯蟹所摄入的农药进行健康风险评估,也得出风险较低的结论;卜媛媛等^[28]针对稻虾综合种养模式下小龙虾膳食风险进行了讨论,发现稻虾综合种养系统农药残留较少,膳食风险较低;穆迎春等^[29]也得出稻渔综合种养收获期水产品中可评估农药的膳食风险较低的结论。这与本研究的结果具有一致性。本研究的综合种养模式下,从生长期到收获期,虽然得出稻蟹、稻虾中农药残留健康风险较低的结论,但是本文仅对部分农药进行了跟踪监测,未涉及到抗生素、重金属等相关方面的监测,可能存在一些与其他药物残留联合作用而导致的污染隐患,并且低剂量长期摄入农药也会影响人体健康,因此仍然需要加强农药源头污染的监控和管理。

3 结论

(1)通过对江苏典型综合种养模式下,稻虾、稻蟹整个生长期水环境和产品中208种农药的监测,表明水环境中农药主要类型为除草剂、杀菌剂、杀虫剂和植物生长调节剂,平均质量分数为 $0.33 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。除草剂、杀菌剂和植物生长调节剂三类农药约占农药检出总量的90%,杀虫剂、杀螨剂、增效剂有少量检出。随着养殖时间延长,农药的残留整体趋向于减少,仅稻

蟹组在7月份发现杀菌剂含量有所增加,根据水稻种植农药使用情况,推测农药主要来源为前期环境残留或灌溉水外源性污染。通过对几个养殖基地综合种养模式下水环境生态风险分析发现,稻蟹、稻虾各抽样点位风险商值总和均小于1,对生态环境具有中风险,需要密切关注除草剂类农药的生态风险。

(2)整个生长期,稻虾、稻蟹中检出农药平均质量分数为 $6.1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (湿质量),稻虾组主要农药类型为除草剂、杀菌剂、杀虫剂,在上市前所检出农药代谢基本完全;稻蟹组为除草剂、杀菌剂和植物生长调节剂,从7月份开始杀菌剂有少量增加。与水环境有相似趋势,即随着养殖时间增加,农药的残留整体趋向于减少。

(3)在检出农药最大残留量的情况下,对同期稻虾、稻蟹的健康风险进行了分析,表明各种农药残留的食品安全风险可以接受。

参考文献:

- [1] 王广军, 林进朔. 稻渔综合种养在粤东精准扶贫中的实践与作用[J]. 海洋与渔业, 2021, 1(2): 112. WANG G J, LIN J S. Practice and role of rice and fishery integrated planting and breeding in targeted poverty alleviation in eastern Guangdong[J]. *Ocean and Fishery*, 2021, 1(2): 112.
- [2] 廖建云. 稻虾共作种养生态农业模式探究[J]. 南方农业, 2020, 14(9): 5-6. LIAO J Y. Research on the ecological agricultural model of rice shrimp farming[J]. *South China Agriculture*, 2020, 14(9): 5-6.
- [3] 管卫兵, 刘凯, 石伟, 等. 稻渔综合种养的科范范式[J]. 生态学报, 2020, 40(16): 5451-5464. GUAN W B, LIU K, SHI W, et al. Scientific paradigm of integrated farming of rice and rish[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2020, 40(16): 5451-5464.
- [4] 于秀娟, 郝向举, 党子乔, 等. 中国稻渔综合种养产业发展报告(2022)[J]. 中国水产, 2023, 47(1): 39-46. YU X J, HAO X J, DANG Z Q, et al. Report on the development of China's rice rishery comprehensive planting and breeding industry (2022)[J]. *China Fisheries*, 2023, 47(1): 39-46.
- [5] 王强盛, 王晓莹, 杭玉浩, 等. 稻田综合种养结合模式及生态效应[J]. 中国农学通报, 2019, 35(8): 46-51. WANG Q S, WANG X Y, HANG Y H, et al. Combination modes and ecological effects of planting-breeding ecosystem in rice field[J]. *Chinese Agricultural Science Bulletin*, 2019, 35(8): 46-51.
- [6] 刘巧荣, 黄磊, 黎玉林, 等. 稻田养殖水产品农残安全性调查与分析[J]. 中国渔业质量与标准, 2013, 3(3): 8-13. LIU Q R, HUANG L, LI Y L, et al. Rice-field aquatic product safety investigation and analysis of pesticide residual[J]. *China Fisheries Quality and Standards*, 2013, 3(3): 8-13.
- [7] 张皓然, 孙星, 卢海燕, 等. 水稻用药策略风险评估与安全性分析[J]. 南京农业大学学报, 2021, 44(4): 675-685. ZHANG H R, SUN X, LU H Y, et al. Evaluation of pesticide application strategy in rice and risk assessment[J]. *Journal of Nanjing Agricultural University*, 2021, 44(4): 675-685.
- [8] BUREAU E C. Technical guidance document on risk assessment[R].

- European Commission: EUR 20418 EN, 2002.
- [9] 涂棋, 徐艳, 李二虎, 等. 典型养鸡场及其周边土壤中抗生素的污染特征和风险评估[J]. 农业环境科学学报, 2020, 39(1): 97-107. TU Q, XU Y, LI E H, et al. Occurrence and risk assessment of antibiotics in typical chicken farms and surrounding soils[J]. *Journal of Agricultural-Environmental Science*, 2020, 39(1): 97-107.
- [10] 李聪, 张艺兵, 李朝伟, 等. 暴露评估在食品安全状态评价中的应用[J]. 检验检疫科学, 2002(1): 11-12. LI C, ZHANG Y B, LI C W, et al. Application of exposure assessment in food safety status assessment[J]. *Quality Safety Inspection and Testing*, 2002(1): 11-12.
- [11] 环境保护部. 中国人群暴露参数(成人卷)[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2013. Ministry of Environmental Protection exposure parameters of Chinese population (adult volume)[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2013.
- [12] 徐佳艳, 彭自然, 和庆, 等. 长三角地区池塘养殖水产品体内农药类污染与食用风险评价[J]. 生态毒理学报, 2017, 12(3): 485-495. XU J Y, PENG Z R, HE Q, et al. Assessing pesticide residues in pond aquaculture products in Yangtze River Delta and the health hazard for human consumption[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2017, 12(3): 485-495.
- [13] 曾小雨. 长江中下游地区小龙虾重金属污染特征、富集规律及健康风险评估[D]. 武汉: 武汉轻工大学, 2022. ZENG X Y. Heavy metal pollution characteristics, enrichment rules and health risk assessment of crayfish in the middle and lower reaches of the Yangtze River[D]. Wuhan: Wuhan Polytechnic University, 2022.
- [14] 农业农村部. 食品安全国家标准 食品中农药最大残留限量: GB 2763—2021[S]. 北京: 中国标准出版社, 2021. Ministry of Agriculture and Rural Affairs. National food safety standard maximum residue limits of pesticides in food: GB 2763—2021[S]. Beijing: China Standards Press, 2021.
- [15] 戴月甄, 袁宝军. 江苏居民营养与健康状况追踪研究[M]. 南京: 南京大学出版社, 2014. DAI Y Z, YUAN B J. Follow up study on nutrition and health status of Jiangsu residents[M]. Nanjing: Nanjing University Press, 2014.
- [16] 黄晓丽, 高磊, 黄丽, 等. 哈尔滨地区养殖池塘中除草剂类农药残留及分布特征[J]. 水产学杂志, 2019, 32(2): 37-43. HUANG X L, GAO L, HUANG L, et al. Residues and distribution characteristics of herbicide pesticides in aquaculture ponds in Harbin[J]. *Chinese Journal of Fishes*, 2019, 32(2): 37-43.
- [17] 王守英. 高压液相色谱-高分辨质谱快速筛查养殖环境及水产品中农药残留的研究[D]. 上海: 上海海洋大学, 2020. WANG S Y. Research on rapid screening of pesticide residues in aquaculture environment and aquatic products by high performance liquid chromatography-high resolution mass spectrometry[D]. Shanghai: Shanghai Ocean University, 2020.
- [18] 刘洋锋, 张海燕, 孔聪, 等. 上海地区水产养殖环境及非药品类渔药投入品中农兽药污染特征及风险评估[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(9): 2055-2063. LIU Y F, ZHANG H Y, KONG C, et al. Pollution characteristics and risk assessment of pesticides and veterinary drugs in aquaculture environment and non-drugs fishery inputs in Shanghai, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2022, 41(9): 2055-2063.
- [19] 孙秀梅, 郜文, 金衍健, 等. 典型养殖环境及水产品中拟除虫菊酯类农药残留分析及食用风险评价[J]. 山东化工, 2020, 49(22): 78, 83. SUN X M, GAO W, JIN Y J, et al. Pollution characteristics and food risk assessment of pyrethrin pesticide residues in sediment, water and aquatic product[J]. *Shandong Chemical Industry*, 2020, 49(22): 78, 83.
- [20] 盛佳联, 杨晓云, 徐汉虹. 2019年我国水稻田农药登记最新情况[J]. 广东化工, 2019, 46(18): 73-75. SHENG J L, YANG X Y, XU H H. Update on pesticide registration in paddy fields in China in 2019[J]. *Guangdong Chemical Industry*, 2019, 46(18): 73-75.
- [21] 徐炜枫. 水稻田农药面源污染状况调查分析及防控[J]. 农业与技术, 2020, 40(23): 35-37. XU W F. Investigation, analysis and control of pesticide non-point source pollution in paddy fields[J]. *Agriculture and Technology*, 2020, 40(23): 35-37.
- [22] 张石云, 宋超, 张敬卫, 等. 哈尼梯田稻鱼共作系统中除草剂的污染特征[J]. 环境科学与技术, 2018, 41(增刊1): 184-192. ZHANG S Y, SONG C, ZHANG J W, et al. Occurrence of herbicides in rice fish system at Honghe Hani terrace fields[J]. *Environmental Science and Technology*, 2018, 41(Suppl1): 184-192.
- [23] 刘沙滨, 黄雅琴, 朝克金. 呼和浩特市近郊蔬菜、土壤有机氯(六六六、DDT)农药污染现状调查[J]. 农村生态环境, 1991, 1(4): 63-65. LIU S B, HUANG Y Q, CHAO K J. Investigation on the pollution status of organic chlorine (HCH, DDT) pesticides in vegetables and soil in the suburbs of Hohhot City[J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 1991, 1(4): 63-65.
- [24] 覃东立, 黄晓丽, 高磊, 等. 东北稻渔综合种养模式下中华绒螯蟹农药残留水平及健康风险评估[J]. 南方水产科学, 2018, 14(6): 89-98. QIN D L, HUANG X L, GAO L, et al. Residues and health risk assessment of pesticides in river crab by integrated rice field aquaculture in northeast China[J]. *South China Fisheries Science*, 2018, 14(6): 89-98.
- [25] 黄晓丽, 高磊, 汤施展, 等. 东北地区养殖淡水鱼有机氯和拟除虫菊酯农药残留与健康风险评估[J]. 中国渔业质量与标准, 2022, 12(2): 1-9. HUANG X L, GAO L, TANG S Z, et al. Organic chlorine and pyrethroid pesticide residues and health risk assessment of cultured freshwater fish in northeast China[J]. *Chinese Fisheries Quality and Standards*, 2022, 12(2): 1-9.
- [26] 于志勇, 金芬, 孙景芳, 等. 北京市场常见淡水食用鱼体内农药残留水平调查及健康风险评估[J]. 环境科学, 2013, 34(1): 251-256. YU Z Y, JIN F, SUN J F, et al. Residual levels of pesticides in freshwater fish from Beijing aquatic market and health risk assessment[J]. *Environmental Science*, 2013, 34(1): 251-256.
- [27] 谭华东, 李勤奋, 张汇杰, 等. 南渡江农业土壤中农药分布特征与生态风险评估[J]. 生态环境学报, 2021, 30(1): 181-189. TAN H D, LI Q F, ZHANG H J, et al. Investigation and risk assessment of organochlorin and pyrethroid pesticide residues in cultured freshwater fish, northeast China[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2021, 30(1): 181-189.
- [28] 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, 1(9): 130-133. BU Y Y, HE X Y, LI A, et al. Discussion on dietary risk of *Procambarus clarkii* under rice-shrimp integrated culture system[J]. *China Food Safety Magazine*, 2022, 1(9): 130-133.
- [29] 穆迎春, 韩刚, 宋金龙, 等. 水产品质量安全风险评估实践与建议[J]. 中国水产, 2019, 1(10): 45-47. MU Y C, HAN G, SONG J L, et al. Practice and suggestions on risk assessment of aquatic product quality and safety[J]. *China Fisheries*, 2019, 1(10): 45-47.