

杨秋红, 皇甫鑫, 郑瑜, 等. 湖北省稻虾养殖模式下小龙虾农药残留与风险评估[J]. 华中农业大学学报, 2024, 43(6): 297-306.
DOI: 10.13300/j.cnki.hnlkxb.2024.06.029

湖北省稻虾养殖模式下小龙虾农药残留与风险评估

杨秋红^{1,3}, 皇甫鑫², 郑瑜², 董靖¹, 艾晓辉^{1,3}

1. 中国水产科学研究院长江水产研究所, 武汉 430223; 2. 内蒙古自治区环境监测总站包头分站, 包头 014060;
3. 中国水产科学研究院/农业农村部水产品质量安全控制重点实验室, 北京 100141

摘要 为了摸清湖北省稻虾综合养殖模式下小龙虾农药残留情况, 调查了湖北省稻虾综合养殖区19种农药的残留水平, 并根据残留结果分析小龙虾农药来源, 对稻田小龙虾的生态风险和膳食风险进行了评估。结果显示: 在选取的22个稻虾养殖采样点中, 水体中共检出3种农药, 分别是 β -六六六、 δ -六六六和异狄氏剂, 其中7个采样点为生态高风险, 但多是由早期环境残留所致。小龙虾样品中共检出4种农药, 其来源与水稻施药有关, 其次与小龙虾投入品饲料也有一定的关系。根据小龙虾膳食风险值排序, 依次为六氯苯>HCHs>滴滴涕s>二甲戊灵, 膳食摄入风险在0.002%~0.206%, 因此调查的湖北省稻田养殖中小龙虾农药残留水平在安全范围内, 但仍要持续关注农药的多途径暴露和长期暴露对小龙虾的潜在膳食风险。

关键词 稻虾养殖; 小龙虾; 农药; 风险评估; 膳食风险

中图分类号 S966.12 **文献标识码** A **文章编号** 1000-2421(2024)06-0297-10

有机氯农药是公认的环境优先控制污染物, 也是典型的持久性有机污染物(persistent organic pollutants, 简称POPs), 具有很长的半衰期, 且能通过食物网积聚, 并对人类健康、环境造成不利影响, 该物质进入环境后, 能够产生致癌、致畸、致突变及生态食物链毒理学效应, 对人体健康和生态系统构成直接或潜在威胁^[1]。吡虫啉广泛用于控制农作物的害虫, 对水生动物具有遗传毒性, 可造成组织病理学改变、血液损伤和氧化损伤, 对虹鳟、斑马鱼的神经行为有干扰作用^[2]。二甲戊灵作为水稻除草剂, 对水生动物有一定的毒性, 并且毒性具有持久性、生物累积性, 还可能致癌^[3]。苯醚甲环唑和丙环唑是农作物上常见的杀菌剂, 被列入环境内分泌干扰物重点监测名单^[4]。

湖北省是我国重要的农业大省, 从明朝后期开始就有“湖广熟, 天下足”美誉, 其中小龙虾作为湖北特色农产品品牌享誉全国^[5]。湖北小龙虾养殖以稻虾种养为主, 据《中国小龙虾产业发展报告(2023)》数据显示, 2023年湖北省小龙虾养殖产量2 490 t, 居全国产量排行首位, 其中湖北省监利市、洪湖市和潜江市年产量分别为16.27、13.32和12.30 t, 是湖北省

小龙虾产量前三的县市^[6]。2019年, “潜江龙虾”作为优质农产品品牌入选全国特色农产品区域公用品牌。

随着湖北龙虾品牌化和稻虾种养模式的逐步推广, 小龙虾的质量安全引起人们越来越多的关注, 但在稻虾种养过程中农药造成的小龙虾体内药物残留问题尚不明确, 养殖环境污染情况不清楚, 由此产生的生态风险和膳食风险也未知, 因此, 加强小龙虾质量安全的监管, 提升小龙虾产业的国内外市场竞争力, 是一个很现实、很重要、很急迫的课题^[7]。本研究以15种有机氯农药和4种常见农药为目标污染物, 对湖北省稻虾综合种养区的农药残留量进行调查分析, 总结污染特征, 分析污染源并根据调查结果进行风险分析, 以期科学管理克氏原螯虾养殖生产区及保障克氏原螯虾消费安全提供参考建议。

1 材料与amp;方法

1.1 仪器和材料

Varian CP-3800气相色谱仪(配ECD检测器, 美国Varian公司), 色谱柱(DB-5MS, Agilent J&W GC Columns); 高效液相色谱-串联三重四级杆质谱仪

收稿日期: 2024-03-15

基金项目: 中国水产科学研究院中央级公益性科研院所基本科研业务费专项(2023TD47)

杨秋红, E-mail: yangqh@yfi.ac.cn

通信作者: 艾晓辉, E-mail: aixh@yfi.ac.cn

(ACCELA-TSQ QUANTUM ACCESS MAX, THERMO LCQUAN 2.6 数据采集处理软件, 美国赛默飞公司)。METTLE-TOLE-DO 精密电子天平 (AE-240, 梅特勒+托利多公司); SZSB-148 固相萃取仪 (美国 Supelco 公司); 自动高速冷冻离心机 (20PR-520, 日本 HITACH 公司); 旋转蒸发仪 (Hei-VAP, 德国 Heidolph 公司); 氮吹仪 (KD200, 杭州奥盛仪器有限公司); 高速搅碎机 (HR2105/90, 飞利浦公司); 涡旋混合器 (HQ-60, 北方同正); 超声仪 (SK40-120DJ, 张家港市神科超声电子有限公司); 恒温烘箱 (WJ-80A-Ⅲ, 上海新苗医疗器械制造有限公司)。

通过资料搜索, 并对农户使用情况调查以及考虑实验条件等因素, 确定检测目标 19 种。其中有机氯类农药 15 种: α -六六六、 β -六六六、 γ -六六六、 δ -六六六、六氯苯、七氯、艾氏剂、环氧七氯、P, P'-滴滴伊、狄氏剂、异狄氏剂、O, P-滴滴涕、P, P'-滴滴涕、P, P'-滴滴涕、灭蚁灵 (国家标准物质研究中心); 其他典型农药 4 种: 吡虫啉 (纯度 99.8%)、二甲戊灵 (纯度 98.8%)、苯醚甲环唑 (纯度 99.9%) 和丙环唑 (纯度

99.0%) (德国 Dr. Ehrenstorfer 公司)。

HLB 固相萃取小柱 (600 mg/3 mL, 美国沃特世公司); 中性氧化铝小柱 (500 mg/3 mL, 色谱纯, 美国 CNW 公司); 乙二醇-N-丙基硅烷 (PSA) 粉和石墨化炭黑 (GCB) 粉 (40~60 μ m, 天津博纳艾尔公司); 乙腈、乙酸乙酯、正己烷、二氯甲烷、丙酮、甲醇 (色谱纯, 美国 J.T Baker 公司); 甲酸、三氟乙酸 (色谱纯, 美国 CNW 公司); NaCl、无水 MgSO₄ (分析纯, 国药集团); 浓硫酸 (优级纯, 宋都开封东大化工有限公司); 超纯水 (电阻率 ≥ 18.2 M Ω ·cm); 氩气纯度高于 99.999%。

1.2 样品采集

样品于 2020 年 6-8 月采自湖北省稻虾综合种养区, 共计 22 个采样位点, 包括湖北省潜江市 8 个、仙桃市 3 个、天门市 3 个、洪湖市 3 个、公安县 2 个、监利市 3 个, 具体位置如表 1 所示。样品种类包括水体、底泥、水草、克氏原螯虾及其投入品饲料。在池塘对角线中心位置采集水样 1 L, 置于棕色玻璃采样瓶中, 暂存于装有冰袋的保温箱中, 样品运回实验室后于 4 $^{\circ}$ C 保存。按照对角线布点法用采泥器采集 3 个

表 1 湖北省稻虾综合养殖区样品采样点

Table 1 Sampling points in the rice-shrimp integrated farming areas in Hubei Province

| 采样编号 Sampling number | 采样地点 Sampling points | 北纬 North latitude | 东经 East longitude | 采样编号 Sampling number | 采样地点 Sampling points | 北纬 North latitude | 东经 East longitude |
|----------------------------|-----------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------------|--------------------------------------|-------------------------|----------------------|
| S1 | 天门韩赵湾 Hanzhao Bay, Tianmen | 30°80' | 113°37' | S12 | 监利严家门 Yanjiamen, Jianli | 29°81' | 112°91' |
| S2 | 天门龙骨湖 Longgu Lake, Tianmen | 30°76' | 113°39' | S13 | 监利新洲村 Xinzhou Village, Jianli | 29°76' | 112°94' |
| S3 | 天门尹家湾 Yinjia Bay, Tianmen | 30°77' | 113°36' | S14 | 监利尹青台 Yinqingtai, Jianli | 29°78' | 112°83' |
| S4 | 潜江刘家台 Liujiatai, Qianjiang | 30°36' | 112°76' | S15 | 洪湖螺山镇 Luoshan Town, Honghu | 29°67' | 113°32' |
| S5 | 潜江熊口镇 Xiongkou Town, Qianjiang | 30°30' | 112°78' | S16 | 洪湖阳财湖村 Yangcaihu Village, Honghu | 29°72' | 113°30' |
| S6 | 潜江周家湾 Zhoujia Bay, Qianjiang | 30°30' | 112°75' | S17 | 洪湖刘家墩 Liujiadun, Honghu | 29°72' | 113°36' |
| S7 | 潜江陈家垸 Chenjiayuan, Qianjiang | 30°21' | 112°72' | S18 | 仙桃刘家湾 Liujiia Bay, Xiantao | 30°31' | 112°46' |
| S8 | 潜江许家台 Xujiatai, Qianjiang | 30°35' | 112°97' | S19 | 仙桃王家湾 Wangjia Bay, Xiantao | 30°31' | 112°48' |
| S9 | 潜江廖家台 Liaojiatai, Qianjiang | 30°25' | 112°78' | S20 | 仙桃严文家台 Yanwenjiatai, Xiantao | 30°30' | 112°48' |
| S10 | 潜江孙家桥 Sunjia Bridge, Qianjiang | 30°25' | 112°78' | S21 | 公安团结村 Tuanjie Village, Gongan | 30°30' | 112°75' |
| S11 | 潜江朱家台 Zhujiatai, Qianjiang | 30°22' | 112°93' | S22 | 公安陈家台村 Chenjiatai Village, Gongan | 30°24' | 112°28' |

分点的表层底泥,在底泥采样点同时采集水草,分别装入密封袋中,暂存于放有冰袋的保温箱,运回实验室后于 $-18\text{ }^{\circ}\text{C}$ 保存。克氏原螯虾由养殖人员下地笼捕捞,选择大小一致的克氏原螯虾,置于装有冰袋的保温箱,运回实验室后剖取肌肉样保存于 $-18\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。最后,收集渔民投喂的小龙虾饲料,于实验室常温保存。

1.3 样品处理和方法测定

1)有机氯类农药。①水样的处理:取200 mL水样于500 mL分液漏斗中,加入15 mL正己烷,剧烈振荡,静置分层后,取正己烷于50 mL离心管中,再加入10 mL正己烷重复提取1次,合并上清液。用3 mL浓硫酸净化1次,漩涡,7 000 r/min离心5 min,用10 mL饱和的硫酸钠溶液洗涤1次,振荡离心,再在50 mL离心管中加入少许无水硫酸钠,脱水,用10 mL正己烷分2次洗涤,合并洗涤液于250 mL鸡心瓶中,旋蒸,浓缩至干,用1 mL正己烷定容,气相色谱仪测定。②克氏原螯虾的处理:取5 g匀质的肌肉(背肌/腹肌)组织于50 mL离心管中,加入20 mL正己烷/二氯甲烷(1:1)混合提取剂,涡旋后超声3 min,7 000 r/min离心5 min,收集上清液于250 mL鸡心瓶中,再加入20 mL混合提取剂重复提取1次,合并上清液,35 $^{\circ}\text{C}$ 旋蒸浓缩至近干,用7 mL正己烷分2次溶解鸡心瓶中的残渣,将溶解液合并于10 mL离心管中,加入1 mL浓硫酸充分振荡,7 000 r/min离心5 min,上层吸入10 mL离心管中,下层再用3 mL正己烷萃取1次,合并,35 $^{\circ}\text{C}$ 氮吹至干,用1 mL正己烷定容,待测。③水草、饲料及底泥的处理:取5 g匀质的植物(及饲料)于50 mL离心管中,加入20 mL正己烷/二氯甲烷(1:1)混合提取剂,涡旋后超声3 min,7 000 r/min离心5 min,收集上清液于250 mL鸡心瓶中,再加入20 mL混合提取剂重复提取1次,合并上清液,35 $^{\circ}\text{C}$ 旋蒸浓缩至近干,用7 mL正己烷分2次溶解鸡心瓶中的残渣,将溶解液合并于10 mL离心管中,加入1 mL浓硫酸充分振荡,7 000 r/min离心5 min,上层吸入10 mL离心管中,下层再用3 mL正己烷萃取1次,合并,35 $^{\circ}\text{C}$ 氮吹至干,用1 mL正己烷定容,待测。④气相色谱分析条件:色谱柱DB-5MS石英毛细管柱(30 m \times 0.25 mm,粒径0.25 μm ,美国Agilent公司);进样口温度280 $^{\circ}\text{C}$;进样方式:不分流进样;检测器温度280 $^{\circ}\text{C}$;初始柱温150 $^{\circ}\text{C}$ 保持1 min,以25 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升到180 $^{\circ}\text{C}$,保持5 min,然后再以2 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升到240 $^{\circ}\text{C}$,保持5 min,再以25 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升到

265 $^{\circ}\text{C}$ 保持5 min;载气为高纯氮气,流速1.0 mL/min;进样量为1 μL 。

2)其他几种农药。水体、底泥和克氏原螯虾中吡虫啉、二甲戊灵、苯醚甲环唑和丙环唑的前处理和测定方法参照文献[3-4,8]方法,水草和饲料的前处理方法参考底泥的处理方法。

1.4 质量控制

1)有机氯类农药标准曲线的配制。 α -六六六、 β -六六六、 γ -六六六、 δ -六六六、狄氏剂、异狄氏剂、灭蚁灵、P,P'-滴滴伊、O,P-滴滴涕、P,P'-滴滴涕、P,P'-滴滴涕配制成1、2、5、10、20 $\mu\text{g}/\text{L}$ 的混标,六氯苯、七氯、艾氏剂、环氧七氯配制成0.5、1、2、5、10 $\mu\text{g}/\text{L}$ 的混标。标准曲线线性关系良好,回归系数均在0.990 0~0.999 9。吡虫啉、二甲戊灵、苯醚甲环唑和丙环唑分别在5.0~200.0、1.0~20.0、1.0~50.0、1.0~50.0 $\mu\text{g}/\text{L}$ 范围内线性关系良好,相关系数在0.996 0~0.999 7。

2)检出限(limits of detection, LOD)。以引起3倍基线噪音的质量浓度(3S/N)作为最低检测限,以引起10倍基线噪音的质量浓度(10S/N)作为定量限(limit of quantitation, LOQ),每种农药的检出限、定量限见表2。分别采用2、5和10倍定量限作为加标浓度,回收率在60%~120%。

1.5 风险评估方法

1)生态风险评估。根据我国生态环境部、卫生健康委编制的《化学物质环境风险评估技术方法框架性指南(试行)》中关于化学物质环境风险评估,采用预测环境浓度(predicted environmental concentration, PEC)与预测无效应浓度(predicted no-effect concentration, PNEC)的比值(生态风险值, risk quotient, RQ)来对环境风险进行表征,其中PEC可基于环境中实测数据和模型计算推导出来,PNEC根据最低半数致死浓度(LC₅₀)、半数效应浓度(EC₅₀)或无观察效应浓度(NOEC)除以合适的评估系数(AF)推导获得。AF为评估系数,当选取化学物质的急性毒性数据时,AF取值1 000,选取慢性毒性数据计算时,AF取值100。采用化学物质对藻、溞和鱼的毒性代表对水环境的危害,通过查阅文献资料以及收集美国环保局生态毒理数据库(USEPA ECOTOX Database)和Pesticide Properties DataBase(PPDB)中水体目标农药的急性毒性数据^[9-12],筛选出PNEC值,以生态风险值(RQ)来评估养殖水环境中农药的生态风险,如表3所示。如果RQ值 <0.1 ,表明该物质潜

表2 19种农药的方法检出限(LOD)及其定量限(LOQ)

Table 2 The limits of detection (LOD) and limit of quantitation (LOQ) of 19 pesticides

| 农药 Pesticides | 水体 Water | | 底泥、水草、饲料和小龙虾 Sediment, waterweed, feed and <i>P. clarkii</i> | |
|-----------------------------|-------------------------|-------------------------|---|--------------------------|
| | LOD/($\mu\text{g/L}$) | LOQ/($\mu\text{g/L}$) | LOD/($\mu\text{g/kg}$) | LOQ/($\mu\text{g/kg}$) |
| α -六六六 α -666 | 5.0×10^{-4} | 1.5×10^{-3} | 0.02 | 0.06 |
| β -六六六 β -666 | 5.0×10^{-4} | 1.5×10^{-3} | 0.02 | 0.06 |
| γ -六六六 γ -666 | 2.5×10^{-4} | 5.0×10^{-4} | 0.01 | 0.02 |
| δ -六六六 δ -666 | 2.5×10^{-3} | 5.0×10^{-3} | 0.10 | 0.20 |
| 六氯苯 Hexachlorobenzene | 5.0×10^{-4} | 1.0×10^{-3} | 0.02 | 0.04 |
| 七氯 Heptachlor | 2.5×10^{-4} | 5.0×10^{-4} | 0.01 | 0.02 |
| P,P'-滴滴滴 P,P'-DDD | 2.0×10^{-3} | 4.0×10^{-3} | 0.08 | 0.16 |
| P,P'-滴滴涕 P,P'-DDT | 2.5×10^{-3} | 5.0×10^{-3} | 0.10 | 0.20 |
| O,P'-滴滴涕 O,P'-DDT | 2.5×10^{-3} | 5.0×10^{-3} | 0.10 | 0.20 |
| P,P'-滴滴伊 P,P'-DDE | 5.0×10^{-4} | 1.0×10^{-3} | 0.02 | 0.04 |
| 艾氏剂 Aldrin | 1.0×10^{-3} | 5.0×10^{-3} | 0.04 | 0.20 |
| 狄氏剂 Dieldrin | 1.5×10^{-3} | 2.5×10^{-3} | 0.06 | 0.10 |
| 异狄氏剂 Endrin | 2.5×10^{-3} | 5.0×10^{-3} | 0.10 | 0.20 |
| 灭蚁灵 Mirex | 2.5×10^{-3} | 5.0×10^{-3} | 0.10 | 0.20 |
| 环氧七氯 Heptachlor epoxide | 2.5×10^{-3} | 5.0×10^{-3} | 0.10 | 0.20 |
| 吡虫啉 Imidacloprid | 2.0×10^{-3} | 1.0×10^{-2} | 0.20 | 1.00 |
| 二甲戊灵 Pendimethalin | 1.0×10^{-4} | 2.5×10^{-4} | 0.005 | 0.01 |
| 苯醚甲环唑 Difenoconazole | 5.0×10^{-3} | 1.0×10^{-2} | 0.50 | 1.00 |
| 丙环唑 Propiconazole | 5.0×10^{-3} | 1.0×10^{-2} | 0.50 | 1.00 |

表3 水体中农药的生态风险评估参数

Table 3 Ecological risk parameters of pesticides in water

| 农药 Pesticides | 敏感物种 Sensitive species | EC ₅₀ /(mg/L) | PENC/($\mu\text{g/L}$) | 参考文献/数据库 Reference/database |
|-----------------------------|--|--------------------------|--------------------------|--------------------------------|
| α -六六六 α -666 | <i>Daphnia magna</i> | 0.37 | 0.37 | PPDB 数据库 PPDB database |
| β -六六六 β -666 | <i>Brachydanio rerio</i> | 1.52 | 1.52 | [13] |
| γ -六六六 γ -666 | <i>Scenedesmus abundans</i> | 2.50 | 2.50 | [13] |
| δ -六六六 δ -666 | <i>Brachydanio rerio</i> | 1.58 | 1.58 | [13] |
| 六氯苯 Hexachlorobenzene | <i>Scenedesmus abundans</i> | 0.01 | 0.01 | PPDB 数据库 PPDB database |
| 七氯 Heptachlor | <i>Pseudokirchneriella subcapitata</i> | 0.027 | 0.027 | PPDB 数据库 PPDB database |
| P,P'-滴滴滴 P,P'-DDD | <i>Polycelis felina</i> | 0.74 | 0.74 | [14] |
| P,P'-滴滴涕 P,P'-DDT | <i>Polycelis felina</i> | 1.05 | 1.05 | [14] |
| O,P'-滴滴涕 O,P'-DDT | <i>Chlorella fusca</i> | 14.18 | 14.18 | ECOTOX 数据库 ECOTOX database |
| P,P'-滴滴伊 P,P'-DDE | <i>Polycelis felina</i> | 1.23 | 1.23 | [14] |
| 艾氏剂 Aldrin | <i>Daphnia magna</i> | 0.028 | 0.028 | PPDB 数据库 PPDB database |
| 狄氏剂 Dieldrin | <i>Chlorella pyrenoidosa</i> | 0.10 | 0.10 | PPDB 数据库 PPDB database |
| 异狄氏剂 Endrin | <i>Daphnia magna</i> | 0.004 | 0.004 | PPDB 数据库 PPDB database |
| 灭蚁灵 Mirex | <i>Chlorella pyrenoidosa</i> | 0.10 | 0.10 | PPDB 数据库 PPDB database |
| 环氧七氯 Heptachlor epoxide | <i>Pseudokirchneriella subcapitata</i> | 200 | 200 | PPDB 数据库 PPDB database |
| 吡虫啉 Imidacloprid | <i>Daphnia magna</i> | 85 | 85 | PPDB 数据库 PPDB database |
| 二甲戊灵 Pendimethalin | <i>Selenastrum capricornutum</i> | 0.004 | 0.004 | PPDB 数据库 PPDB database |
| 苯醚甲环唑 Difenoconazole | <i>Scenedesmus subspicatus</i> | 0.032 | 0.032 | PPDB 数据库 PPDB database |
| 丙环唑 Propiconazole | <i>Navicula seminulum</i> | 0.093 | 0.093 | PPDB 数据库 PPDB database |

在风险很低; $0.1 \leq \text{RQ}$ 值 < 1.0 , 该物质潜在风险中等; RQ 值 ≥ 1.0 , 则该物质潜在风险较高。

2) 膳食风险评价。参考我国农业农村部发布的第2308号文件《食品中农药残留风险评估指南》, 并

根据我国居民的膳食消费量,估算农药的膳食摄入量。结合克氏原螯虾中农药的残留浓度中值(supervised trials median residue,简称STMR,公式中以 S_{TMR} 表示)估算克氏原螯虾长期日均膳食摄入量(national estimated daily intake,简称NEDI,公式中以 N_{EDI} 表示)。通过计算各农药的膳食摄入风险值(risk quotient 1, RQ1,公式中以 R_{Q1} 表示)来评估膳食风险大小,RQ1值越小表示食用小龙虾风险越小,若农药在小龙虾中的残留水平导致 $RQ1 > 100\%$,则表明居民长期摄入小龙虾可能带来健康风险。计算公式如下:

$$N_{EDI} = S_{TMR} \times F \quad (1)$$

$$R_{Q1} = N_{EDI} / (A_{DI} \times B_w) \quad (2)$$

式(1)中, F :长期食用克氏原螯虾人群的日均消费量,kg/d;式(2)中, A_{DI} :每日允许摄入量,mg/(kg·d); B_w :体质量,kg。

1.6 数据处理与分析

使用Excel 2010软件对数据进行整理,采用origin 2018软件对数据进行绘图。

2 结果与分析

2.1 稻虾养殖环境中农药的残留水平及残留特征

湖北省稻虾养殖区农药残留情况见表4。22个水样共检出3种农药,分别为 β -六六六, δ -六六六和异狄氏剂,3种农药总检测值为ND~26.22 $\mu\text{g/L}$,检出率最高的 β -六六六除了在公安没有检出,其余地区均有检出; δ -六六六在潜江和监利地区有检出,异狄氏剂仅在监利有检出。底泥中共检出6种农药,6种农药总检测范围为ND~161.18 $\mu\text{g/kg}$,除了天门没有任何农药检出,其余地区底泥中均有农药检出,其中六氯苯在洪湖3个底泥采样点均有检出,且包含检出的最高量; P,P' -滴滴伊在潜江检出率最高,且最高检出量为21.59 $\mu\text{g/kg}$; O,P' -滴滴涕仅在公安检出,最高检出量为33.89 $\mu\text{g/kg}$ 。水草在22个样品中共检出7种农药,7种农药总检测值为427.69 $\mu\text{g/kg}$,除了监利没有任何农药检出,其余地区水草中均有农药检出, δ -六六六、艾氏剂和 P,P' -滴滴伊最高检出量均出现在潜江采样点,公安采集到5种农药,是种类最多的地区。22个饲料样品汇总共检出农药10种,10种农药总检测值为518.87 $\mu\text{g/kg}$,每个地区饲料中都有不同种类和不同程度的农药检出,其中潜江地区共检出8种农药,且六氯苯和 γ -六六六检出率为100%。从以上检出情况来看,在稻虾养殖

环境及投入品中农药整体检出率呈现为饲料>底泥>水草>水体,这说明在稻虾养殖过程中,农药残留检出较多的是饲料,其次是底泥。

在22个小龙虾样品中,共检出4种农药,有 γ -六六六、六氯苯、 P,P' -滴滴伊和二甲戊灵,检出率分别为9.09%、4.55%、13.64%和4.55%。4种农药总检测值为68.39 $\mu\text{g/kg}$,其中 γ -六六六的检出范围为ND~2.11 $\mu\text{g/kg}$,六氯苯为ND~6.6 $\mu\text{g/kg}$, P,P' -滴滴伊为ND~43.33 $\mu\text{g/kg}$,二甲戊灵为ND~3.59 $\mu\text{g/kg}$ 。根据检出结果,小龙虾样品中农药残留与养殖环境中使用农药有关,同时不容小觑的是饲料对小龙虾中农药残留也有影响。本次调查中超过50%的采样点,小龙虾样品及其对应的饲料样品中有相同的污染物检出,这表明小龙虾饲料中的农药与小龙虾体内农药检出相关。

2.2 湖北地区稻虾养殖水环境中农药的生态风险评估

通过文献资料获得各个农药的急性毒性数据与评估系数,根据两者比值获得PNEC值(表3),再根据表4测得的水体中各个农药的实际浓度来计算生态风险值(RQ)。图1为湖北省稻虾养殖区22个采样点水体中农药的RQ值。其中,农药 β -六六六和 δ -六六六平均RQ值在0.1~1.0范围内,表明此2种农药对水体中部分位点的生态环境存在潜在中风险;异狄氏剂的平均RQ值 > 1.0 ,表明该农药对稻虾养殖水体中的生态环境存在高风险;其余检出指标的RQ值均 < 0.1 ,表明农药总体呈现低风险。

2.3 小龙虾中农药的健康风险评估

本研究所调查的稻虾养殖区内小龙虾农药残留以有机氯六六六和滴滴涕为主。《食品安全国家标准食品中农药最大残留限量》(GB2763—2016)中的规定了HCHs和DDTs在水产品中的最大残留限量,HCHs包括 α -六六六、 β -六六六、 γ -六六六和 δ -六六六总和 ≤ 0.1 mg/kg;4种滴滴涕包括 P,P' -滴滴涕、 O,P' -滴滴涕、 P,P' -滴滴伊和 P,P' -滴滴涕总和 ≤ 0.5 mg/kg。六氯苯是《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》规定限期淘汰的持久性有机污染物,它主要用于五氯酚钠生产,2022年欧盟官方公报发布授权法案(EU) 2022/2291,新增六氯苯的意外痕量污染物限值为10 mg/kg。目前国内未有水产品中二甲戊灵残留限量标准,日本实行肯定列表制度对水产品中除草剂残留限量均执行0.01 mg/kg的“统一标准”。本次调查湖北稻虾养殖区农药残留组分

表4 湖北省稻虾养殖区农药残留情况
Table 4 Pesticide residues in Hubei integrated cultivation mode

| 农药组分 Pesticides | 水体 Water | | | | 底泥 Sediment | | | | 水草 Waterweed | | | | 饲料 Feed | | | | 小龙虾 <i>P. clarkii</i> | | | |
|-----------------------------|---|--|--------------------------------|---|--------------------------------|--|---|--------------------------------|--|---|--------------------------------|--|---|--------------------------------|--|---|--------------------------------|--|--|--|
| | 质量浓度/ Range of con- centration ($\mu\text{g/L}$) | 平均值/ 标准差/ ($\mu\text{g/L}$) $\bar{X}\pm\text{SD}$ | 检出 率/% Detection rate | 平均值/ 标准差/ ($\mu\text{g/kg}$) $\bar{X}\pm\text{SD}$ | 检出 率/% Detection rate | 残留量/ Residues ($\mu\text{g/kg}$) | 平均值/ 标准差/ ($\mu\text{g/kg}$) $\bar{X}\pm\text{SD}$ | 检出 率/% Detection rate | 残留量/ Residues ($\mu\text{g/kg}$) | 平均值/ 标准差/ ($\mu\text{g/kg}$) $\bar{X}\pm\text{SD}$ | 检出 率/% Detection rate | 残留量/ Residues ($\mu\text{g/kg}$) | 平均值/ 标准差/ ($\mu\text{g/kg}$) $\bar{X}\pm\text{SD}$ | 检出 率/% Detection rate | 残留量/ Residues ($\mu\text{g/kg}$) | 平均值/ 标准差/ ($\mu\text{g/kg}$) $\bar{X}\pm\text{SD}$ | 检出 率/% Detection rate | | | |
| α -六六六 α -666 | ND | — | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | | | |
| β -六六六 β -666 | ND~2.70 | 0.74±1.04 | 33.33 | ND | ND | ND~13.05 | 0.59±2.78 | 4.76 | ND~2.92 | 0.13±0.62 | 4.76 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | | | |
| γ -六六六 γ -666 | ND | — | ND | ND~2.70 | 0.12±0.58 | 33.33 | ND~29.28 | 1.33±6.24 | 4.76 | ND~22.14 | 4.96±5.13 | 66.67 | ND~6.60 | 0.51±1.67 | 9.09 | ND | ND | | | |
| δ -六六六 δ -666 | ND~5.34 | 0.44±1.44 | 9.52 | ND | — | ND | ND~27.67 | 2.44±6.47 | 19.05 | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| 六氯苯 Hexachlorobenzene | ND | — | ND | ND~7.93 | 1.54±2.56 | 4.76 | ND~40.29 | 1.83±8.59 | 4.76 | ND~11.59 | 2.88±2.99 | 61.90 | ND~2.11 | 0.10±0.46 | 4.55 | ND | ND | | | |
| 七氯 Heptachlor | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND~30.11 | 2.85±6.97 | 23.81 | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| P,P'-滴滴涕 P,P'-DDD | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| P,P'-滴滴涕 P,P'-DDT | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| O,P'-滴滴涕 O,P'-DDT | ND | — | ND | ND~33.89 | 1.54±7.23 | 4.76 | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| P,P'-滴滴涕 P,P'-DDE | ND | — | ND | ND~21.59 | 3.16±6.74 | 23.81 | ND~29.33 | 2.99±8.13 | 14.29 | ND | — | ND | ND~43.33 | 2.34±9.23 | 13.64 | ND | ND | | | |
| 艾氏剂 Aldrin | ND | — | ND | ND~6.33 | 0.65±1.76 | 4.76 | ND~211.1 | 9.60±45.01 | 4.76 | ND~26.49 | 2.52±5.87 | 33.33 | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| 狄氏剂 Dieldrin | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND~3.55 | 0.16±0.76 | 4.76 | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| 异狄氏剂 Endrin | ND~0.21 | 0.01±0.04 | 4.76 | ND~6.76 | 0.31±1.44 | 4.76 | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| 灭蚊灵 Mirex | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| 环氧七氯 Heptachlor epoxide | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| 吡虫啉 Imidacloprid | ND | — | ND | ND | — | ND | ND~4.02 | 0.53±1.18 | 18.18 | ND~15.79 | 3.72±6.05 | 66.67 | ND~3.27 | — | ND | ND | ND | | | |
| 二甲戊灵 Pendimethalin | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND~2.94 | 0.43±0.96 | 19.05 | ND~3.59 | 0.16±0.77 | 4.55 | ND | ND | | | |
| 苯醚甲环唑 Difenoconazole | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | ND | | | |
| 丙环唑 Propiconazole | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | — | ND | ND | ND | | | |

注:ND表示未检出。Note: ND indicates not detected.

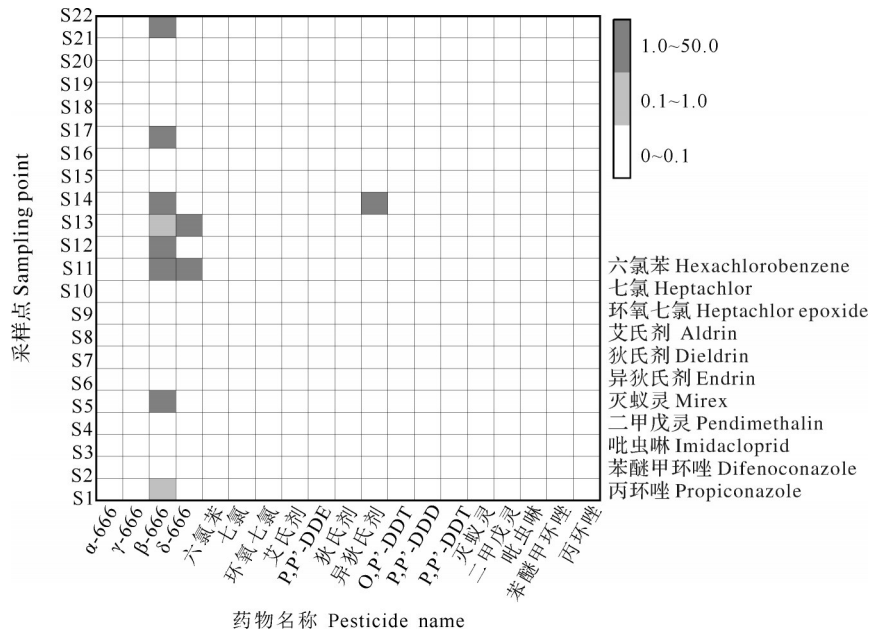


图1 采样点水体中农药的RQ值

Fig. 1 RQ values of pesticides in water environment at the sampling site

中,γ-六六六、六氯苯、P,P’-滴滴伊和二甲戊灵均未超出限量标准。

由于产品不再生产或得不到数据支持,农药残留联席会议(JMPR)于20世纪七八十年代撤销了六氯苯等共11种农药的ADI,参考之前的ADI值^[15]。六六六、滴滴涕和二甲戊灵的ADI值参考《食品安全国家标准 食品中农药最大残留限量》(GB2763—2016)。同时,根据《中国统计年鉴2023》第六章-人民生活部分、第4节-“全国居民人均主要食品消费量”获得2022年人均水产品消费量为13.9 kg,假设该值全部为小龙虾的消费,居民日消费量为0.038 kg。根据国家体育总局开展的“第五次国民体质检测公报”得到居民平均体质量65 kg,计算得到克氏原螯虾长期膳食风险如表5所示。小龙虾样品中有4种农药检出,其RQ1值在0.002%~0.206%,从RQ1值对检出的农药进行风险排序依次为:六氯苯>HCHs>DDTs>二甲戊灵。

表5 小龙虾中农药残留风险评价

Table 5 Risk assessment of pesticides in *P. clarkii*

| 农药 Pesticides | 中位残留量/ (mg/kg) Median concentration | ADI/ [mg/(kg·d)] | RQ1/% |
|--------------------------|--|---------------------|-------|
| 六六六 HCHs | 0.004 55 | 0.005 0 | 0.053 |
| 滴滴涕 DDTs | 0.004 23 | 0.010 0 | 0.025 |
| 六氯苯 Hexachlorobenzene | 0.002 11 | 0.000 6 | 0.206 |
| 二甲戊灵 Pendimethalin | 0.003 59 | 0.100 0 | 0.002 |

3 讨论

由本研究结果可知,湖北省稻虾养殖区水体、底泥、饲料、水草和小龙虾中均存在农药残留问题,从污染来源分析,农药残留最多的是饲料,其次是底泥。这提醒我们水产品中药物残留原因一方面是环境污染,另外一方面也可能是投入品中药物残留所致。水产饲料和畜禽饲料主要以农作物为主,而农作物在种植期间使用的农药种类和频率也逐年增加,即使国家加强对超量使用农药的管理,此现象仍旧屡禁不止,过多的农药使用就会导致一系列的残留问题^[16-17],这正是稻虾养殖环境中饲料中农药检出率较高的原因。石宝明等^[18]也提到畜禽体内的农药残留主要来自饲料中农药污染,且会蓄积在畜禽体内,并通过食物链最终进入人体,这与本研究农药残留主要集中在饲料中的结果一致。刘崇万等^[19]的研究结果显示除草剂在稻虾及稻蟹养殖环境中的残留主要集中在环境样品,尤其是底泥中,且残留主要集中在养殖前期,说明在未投苗前,环境中就已经有除草剂存在;徐佳艳等^[20]的研究结果表明,长三角地区养殖池塘中沉积物检出率较高的有β-HCH、γ-HCH、P,P’-滴滴涕和P,P’-滴滴伊,这些结果均与本文底泥残留情况一致。

从检出种类来看,稻虾养殖环境及饲料中检出的农药主要以γ-六六六、六氯苯和P,P’-滴滴伊检出率较高,其中β-六六六是六六六的同分异构体,化学性质和物理性质相似,结构稳定,半衰期长,难以降

解^[21]。P,P'-滴滴涕的检出与我国曾大量生产和使用滴滴涕有巨大的关系,并且该农药禁用较晚,禁令颁布以后很多农药的生产仍以滴滴涕为主要的中间体,而提炼环节不过关,导致成品中滴滴涕的含量超标^[22]。吴雨珊等^[23]的研究结果显示,奶牛饲料中有机氯六六六以 α -六六六形式存在,滴滴涕主要以P,P'-滴滴涕形式存在于青绿饲料、青贮饲料和玉米秸秆中;Nag等^[24]在不同的饲料样品中检出有机氯六六六和滴滴涕,其中六六六主要以 γ -六六六检出频率最高;陈永庆^[25]调查了陕南稻渔综合种养环境中农药残留情况,并在水稻、螃蟹和泥鳅中检出艾氏剂、氯丹、六氯苯、滴滴涕和六六六等。以上研究测得的饲料中的药物类型也均是以有机氯为主,与本研究的结果一致。

小龙虾样品中农药的检出与水稻施药有关。小龙虾生长周期一般是3-9月份,水稻种植期是5-10月份^[26],在重合的时间段,正是江汉平原气温高、虫害严重、杂草茂盛时期,导致农药使用频繁^[21]。徐佳艳等^[20]的研究提到,长三角地区池塘养殖水产品体内六六六的主要污染种类为 β -六六六,说明是来自历史残留;陈永庆^[25]调查了陕南稻渔综合种养中螃蟹、泥鳅的农药污染情况,在抽查的螃蟹样品中检出了滴滴涕和六六六,在泥鳅中检出了滴滴涕;王薇等^[22]研究的辽东半岛海域内有机氯检出率高于67%;黄晓丽等^[15]调查的东北地区淡水鱼中有机氯污染情况显示,检出率最高的为七氯、六氯苯和 β -六六六。可见,水产品受农药污染的问题,在全国范围内越来越普遍,必须予以重视。

从稻虾养殖环境中农药的生态风险结果来看,环境中检出农药数量较少,且属于早期环境残留导致,近些年这类农药均已停止使用,因此湖北省稻虾养殖水体总体风险较低。水稻种植过程中使用的农药一部分进入水体,一部分沉积在土壤或底泥中,但若长期暴露,会通过食物链传递到水产动物体内,并对人类健康产生风险,因此农药对环境产生的生态风险仍要引起重视。徐志华等^[26]调查了江苏某地稻虾蟹养殖模式下养殖水体中的农药种类,结果发现抽样点联合RQ在0到1之间,属于中等风险;张石云等^[27]对哈尼梯田稻鱼系统水体中除草剂的污染研究显示,除草剂的综合生态风险为高风险。以上研究与本研究具有相同的养殖模式,其结果也与本研究一致。

覃东立等^[21]研究的东北稻田中华绒螯蟹摄入农

药为低风险;徐志华等^[26]调查的江苏某地区稻虾蟹中农药残留结果表明,该地区的稻虾蟹的食用风险在可接受范围内;何小燕^[28]以淮安地区稻虾综合种养系统为研究对象,并采用急性、慢性膳食暴露风险评估和食品安全指数法对检出的农药进行了风险评估,结果显示所有农药风险程度可接受。参考以上研究并综合本研究结果,湖北省稻虾养殖环境中,各农药残留的食品安全风险在可接受范围内,RQ1值远远小于1,因此湖北省稻虾养殖区小龙虾的食用是安全的。

此外,由于缺乏相关农药的急性参考剂量(ARfD),本研究未对短期膳食风险进行评估,建议政府相关部门加大稻虾养殖水产品的监管力度。在今后的研究中也需持续关注农药的多途径暴露和长期暴露对小龙虾的潜在膳食风险。同时,加强对水产品饲料和养殖底泥中污染物的检测和治理,保证稻虾养殖环境的生态安全及小龙虾的食用安全。

参考文献 References

- [1] 钟耀,王建中,杨科璧,等. 有机氯化合物及其迁移转化研究[J]. 安徽农业科学,2007,35(15):4418,4429. ZHONG Y, WANG J Z, YANG K B, et al. Study on the organic chlorine compound[J]. Journal of Anhui agricultural sciences, 2007, 35(15):4418,4429 (in Chinese).
- [2] ABDEL RAHMAN A N, MANSOUR D A, ABD EL-RAHMAN G I, et al. Imidacloprid toxicity in *Clarias gariepinus*: Protective role of dietary *Hyphaene thebaica* against biochemical and histopathological disruption, oxidative stress, immune genes expressions, and *Aeromonas sobria* infection [J/OL]. Aquaculture, 2022, 555: 738170 [2024-03-15]. <https://doi.org/10.1016/j.aquaculture.2022.738170>.
- [3] YANG Q H, AI X H, LI S Q, et al. Determination of pendimethalin in water, sediment, and *Procambarus clarkii* by high performance liquid chromatography-triple quadrupole mass spectrometry [J/OL]. Environmental monitoring and assessment, 2019, 191(10): 621 [2024-03-15]. <https://doi.org/10.1007/s10661-019-7794-4>.
- [4] 杨秋红,徐露露,周顺,等. 高效液相色谱-三重四级杆质谱法测定稻虾综合种养环境中苯醚甲环唑和丙环唑残留量[J]. 分析实验室, 2023, 42(6):807-812. YANG Q H, XU L L, ZHOU S, et al. Determination of difenoconazole and propiconazole residues in integrated rice and *Procambarus clarkii* breeding environments by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Chinese journal of analysis laboratory, 2023, 42(6): 807-812 (in Chinese with English abstract).
- [5] 石雅菁. 基于抖音平台的湖北小龙虾营销及其优化策略调研

- 报告[D]. 南宁:广西大学,2022.SHI Y J. Investigation report on marketing and optimization strategy of Hubei crayfish based on Tik Tok platform[D]. Nanning: Guangxi University, 2022 (in Chinese with English abstract).
- [6] 全国水产推广总站. 中国小龙虾产业发展报告(2021)[J]. 中国水产, 2021(7): 27-33. National Fisheries Technology Extension Center. China crayfish industry development report (2021)[J]. Aquarium, 2021(7): 27-33 (in Chinese).
- [7] 夏芸, 于航盛. 基于态势分析法的中国小龙虾质量安全现状评价[J]. 渔业信息与战略, 2019, 34(2): 100-105. XIA Y, YU H S. SWOT analysis of quality and safety of crayfish in China [J]. Fishery information & strategy, 2019, 34(2): 100-105 (in Chinese with English abstract).
- [8] YANG Q H, AI X H, DONG J, et al. A QuEChERS-HPLC-MS/MS method with matrix matching calibration strategy for determination of imidacloprid and its metabolites in *Procambarus clarkii* (crayfish) tissues [J/OL]. Molecules, 2021, 26(2): 274 [2024-03-15]. <https://doi.org/10.3390/molecules26020274>.
- [9] 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. Distribution and ecotoxicological risk of current-use pesticides in agricultural soil from Nandu River basin in Hainan [J]. Ecology and environmental sciences, 2021, 30(1): 181-189 (in Chinese with English abstract).
- [10] 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 agro-environment science, 2020, 39(1): 97-107 (in Chinese with English abstract).
- [11] 石会娟, 张敏, 张金振, 等. 蜂花粉中新烟碱农药的残留分析及膳食摄入风险评估[J]. 现代食品科技, 2023, 39(11): 295-301. SHI H J, ZHANG M, ZHANG J Z, et al. Residue analysis and dietary intake risk assessment of neonicotinoid pesticides in Chinese bee pollen [J]. Modern food science and technology, 2023, 39(11): 295-301 (in Chinese with English abstract).
- [12] 王敏, 黄晨, 隋蕾, 等. 兴庆湖中典型抗生素污染特征及其生态风险评估[J]. 西安理工大学学报, 2020, 36(1): 17-23. WANG M, HUANG C, SUI L, et al. Status of antibiotics contamination and ecological risks assessment on Xingqing Lake [J]. Journal of Xi'an University of Technology, 2020, 36(1): 17-23 (in Chinese with English abstract).
- [13] OLIVEIRA-FILHO E C, PAUMGARTTEN F J R. Comparative study on the acute toxicities of α , β , γ , and δ isomers of hexachlorocyclohexane to freshwater fishes [J]. Bulletin of environmental contamination and toxicology, 1997, 59(6): 984-988.
- [14] KOUYOU MJIAN H H, UGLOW R F. Some aspects of the toxicity of p, p'-DDT, p, p'-DDE and p, p'-DDD to the freshwater planarian *Polycelis felina* (Tricladida) [J]. Environmental pollution, 1974, 7(2): 103-109.
- [15] 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及健康风险评估[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. Investigation and risk assessment of organochlorine and pyrethroid pesticide residues in cultured freshwater fish, Northeast China [J]. Chinese fishery quality and standards, 2022, 12(2): 1-9 (in Chinese with English abstract).
- [16] 杨军威. 畜牧养殖过程中饲料安全问题及改善措施[J]. 农家参谋, 2022(14): 87-89. YANG J W. Feed safety problems and improvement measures in animal husbandry [J]. The farmers consultant. 2022(14): 87-89 (in Chinese).
- [17] 王娇, 谷旭, 李军国, 等. 反刍动物饲料中农药残留研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2019, 10(11): 3225-3230. WANG J, GU X, LI J G, et al. Research progress of pesticide residues in ruminant animal feed [J]. Journal of food safety & quality, 2019, 10(11): 3225-3230 (in Chinese with English abstract).
- [18] 石宝明, 刘洋, 白广栋, 等. 饲料中农药残留对动物的毒性作用及其消除技术研究进展[J]. 动物营养学报, 2020, 32(10): 4785-4792. SHI B M, LIU Y, BAI G D, et al. Research progress on toxicity of pesticide residues in feed to animals and its elimination technology [J]. Chinese journal of animal nutrition, 2020, 32(10): 4785-4792 (in Chinese with English abstract).
- [19] 刘崇万, 朱晓华, 徐志华, 等. 江苏典型稻虾及稻蟹共作系统中除草剂残留非靶向动态筛查及污染特征[J]. 生态与农村环境学报, 2022, 38(7): 933-943. LIU C W, ZHU X H, XU Z H, et al. Dynamic non-target analysis and occurrence of herbicides residues in rice-crayfish and rice-crab co-culture systems in Jiangsu Province [J]. Journal of ecology and rural environment, 2022, 38(7): 933-943 (in Chinese with English abstract).
- [20] 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 (in Chinese with English abstract).
- [21] 覃东立, 黄晓丽, 高雷, 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 (in Chinese with English abstract).
- [22] 王薇, 李清波, 王晨祥, 等. 辽东半岛海域鱼贝中有机氯农药

- 残留及其风险评估[J].生态毒理学报, 2015, 10(3): 135-143. WANG W, LI Q B, WANG C X, et al. Residues and risk assessment of organochlorine pesticides in fish and shellfish samples of Liaodong peninsula[J]. Asian journal of ecotoxicology, 2015, 10(3): 135-143 (in Chinese with English abstract).
- [23] 吴雨珊, 孙丹丹, 李军国, 等. 奶牛饲料中多种农药残留调查分析[J]. 食品安全质量检测学报, 2019, 10(11): 3273-3279. WU Y S, SUN D D, LI J G, et al. Survey on multiple pesticides residues in cow feed[J]. Journal of food safety & quality, 2019, 10(11): 3273-3279 (in Chinese with English abstract).
- [24] NAG S K, RAIKWAR M K. Persistent organochlorine pesticide residues in animal feed[J]. Environmental monitoring and assessment, 2011, 174(1/2/3/4): 327-335.
- [25] 陈永庆. 陕南稻渔综合种养调查、水产品质量安全检测及稻田蟹品质分析与评价[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2022. CHEN Y Q. Investigation on comprehensive planting and breeding of rice and fishery in southern Shaanxi, quality and safety inspection of aquatic products and quality analysis and evaluation of paddy crabs [D]. Yangling: Northwest A & F University, 2022 (in Chinese with English abstract).
- [26] 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. 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 (in Chinese with English abstract).
- [27] 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(S1): 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 & Technology, 2018, 41(S1): 184-192 (in Chinese with English abstract).
- [28] 何小燕. 稻虾综合种养模式下克氏原螯虾的农药残留风险与营养价值评估[D]. 淮安: 淮阴工学院, 2023. HE X Y. Risk of pesticide residues and evaluation of nutritional value of *Procambarus clarkii* under the comprehensive breeding mode of rice and shrimp [D]. Huaian: Huaiyin Institute of Technology, 2023 (in Chinese with English abstract).

Residues and risk assessment of pesticides in integrated rice-crayfish co-culture systems in Hubei Province

YANG Qiuhong¹, HUANGFU Xin², ZHENG Yu², DONG Jing¹, AI Xiaohui^{1,3}

1. Yangtze River Fisheries Research Institute, Chinese Academy of Fishery Sciences, Wuhan 430223, China; 2. Baotou Branch of the General Environmental Monitoring Station of Inner Mongolia Autonomous Region, Baotou 014060, China; 3. Chinese Academy of Fishery Sciences, Key Laboratory of Control of Quality and Safety for Aquatic Products, Ministry of Agriculture, Beijing 100141, China

Abstract The residues of 19 pesticides in integrated rice and *Procambarus clarkii* breeding environments in Hubei Province were investigated, and the ecological risk and dietary risks associated with *P. clarkii* in paddy fields were assessed. The results showed that three pesticides, β -666, δ -666 and endrin, were detected in the water samples from 22 sites of rice and *P. clarkii* farming, but most of these residues were attributed to earlier environmental residues. Four types of pesticides were detected in *P. clarkii* samples, with one source linked to pesticide application on rice, and another related to the feed of *P. clarkii*. The order of dietary risk values for *P. clarkii* was hexachlorobenzene > HCHS > DDTs > pendimethalin, with the dietary intake risks ranging from 0.002% to 0.206%. Therefore, the levels of pesticide residues in the rice and *P. clarkii* breeding environments in Hubei Province are within a safe range, but the potential dietary risks associated with multi-route and long-term pesticide exposure to crayfish warrant ongoing attention.

Keywords integrated rice and crayfish breeding model; *Procambarus clarkii*; pesticide; risk assessment; dietary risk

(责任编辑:边书京)