

崔嵩, 李斐, 贾朝阳, 等. 三江平原噻虫嗪网格化使用和残留清单的建立及生态风险评估[J]. 南水北调与水利科技(中英文), 2024, 22(4): 708-718. CUI S, LI F, JIA C Y, et al. Development of the gridded usage and residues inventory of thiamethoxam and ecological risk assessment in the Sanjiang Plain[J]. South-to-North Water Transfers and Water Science & Technology, 2024, 22(4): 708-718. (in Chinese)

三江平原噻虫嗪网格化使用和残留清单的建立 及生态风险评估

崔嵩^{1,2}, 李斐^{1,2}, 贾朝阳^{1,2}, 贾宏亮³, 李一凡^{1,2}

(1. 东北农业大学水利与土木工程学院, 哈尔滨 150030; 2. 东北农业大学松花江流域生态环境保护研究中心, 哈尔滨 150030;
3. 大连海事大学环境科学与工程学院, 辽宁 大连 116026)

摘要:以我国三江平原为研究区域, 采用水稻、玉米和大豆种植面积作为替代数据, 通过估算噻虫嗪使用量建立其网格化使用清单; 应用改进后充分考虑环境行为过程的网格化农药排放和残留模型(simplified gridded pesticide emission and residue model, SGPERM)建立噻虫嗪网格化残留清单, 并以此估算土壤中噻虫嗪残留的质量分数。同时, 使用风险熵法(risk quotient, RQ)评估新烟碱类杀虫剂的潜在生态风险。结果表明: 2011—2020 年三江平原累计使用噻虫嗪约 85.6 t, 通过喷洒飘移和径流排放造成的噻虫嗪损失量约为 0.97 t; 2020 年三江平原噻虫嗪的总残留量为 13.1 t, 基于残留量估算得到各网格内表层土壤中噻虫嗪的空间质量分数范围为 0~3.45 ng/g; 三江平原土壤中噻虫嗪的残留会对研究区域内典型生物——赤子爱胜蚓(*Eisenia foetida*)产生潜在风险。使用清单的建立方法及改进的排放/残留清单模型能够有效揭示使用和残留情况的时空演变规律, 为农药的污染控制措施及相关政策与行动计划的制定提供基础数据和科学依据, 也可对相关农药网格化清单的建立提供技术方法。

关键词: 噻虫嗪; 使用清单; 残留清单; 三江平原; 生态风险

中图分类号: X53 **文献标志码:** A **DOI:** 10.13476/j.cnki.nsbdqk.2024.0072

新烟碱类杀虫剂与尼古丁具有相似的结构和作用, 能够有效控制蚜虫和粉虱等吸吮性害虫^[1]。自 1990 年新烟碱类杀虫剂投产以来, 因其高效、广谱和低抗性等综合优势已在全球范围内被广泛使用, 并逐渐取代传统杀虫剂^[2]。目前, 该类杀虫剂已在 120 多个国家商业化, 约占全球农用化学品市场份额的 30%^[3-4]。然而, 新烟碱类杀虫剂在使用后仅有 5% 左右的有效成分能够被植物吸收, 其余大部分则进入土壤环境中^[5], 并可通过田间排水、地表径流、土壤淋溶、尘土飞扬以及大气干湿沉降等方式转移到其他环境介质中, 包括水体、沉积物、颗粒物和灰尘^[6-10]。这些在环境介质中残留的新烟碱类杀虫剂不仅对土壤造成污染, 还会增加地表水和地下水中相应化学组分含量, 影响地下水补给水源的质量^[11], 甚至能够直接对非靶标物种造成危害, 导致生物多样性丧失, 并通过食物链转移至高级营养生物体^[12]。

针对新烟碱类杀虫剂对生态环境安全带来的危害与挑战, 国内目前已经开展了相关调查研究工作。例如, 浙江、广东、江西和江苏农田中新烟碱类杀虫剂的平均质量分数范围在 19.5~46.1 ng/g^[13], 珠江三角洲的平均质量分数范围在 0.26~120 ng/g^[6]。此外, Liu 等^[14]通过对黑龙江省七星河流域农田-河流-沼泽连续体的研究发现, 农田土壤中新烟碱类杀虫剂的质量分数范围为 2.23~136 ng/g, 水体中新烟碱类杀虫剂的质量浓度范围为 3.20~51.7 ng/L, 沉积物中新烟碱类杀虫剂的质量分数范围为 1.53~8.40 ng/g, 并估算了新烟碱类杀虫剂通过地表径流方式迁移到水环境的输入量及沉积物残留清单。当前, 关于新烟碱类杀虫剂的研究工作主要集中于南方地区, 而对东北地区的监测数据仍相对缺乏。此外, 环境监测尽管能直接获取含量数据, 但其所能覆盖的范围有限且无法全面地提供用于尺度效应研究的基

收稿日期: 2023-12-23 修回日期: 2024-03-27 网络出版时间: 2024-08-07

网络出版地址: <https://link.cnki.net/urlid/13.1430.TV.20240807.0857.002>

基金项目: 黑龙江省杰出青年基金项目(JQ2023E001); 东北农业大学“青年领军人才”支持计划项目(NEAU2023QNLJ-013)

作者简介: 崔嵩(1981—), 男, 黑龙江宝清人, 教授, 博士, 主要从事农业水土资源环境效应研究。E-mail: cuisong-bq@neau.edu.cn

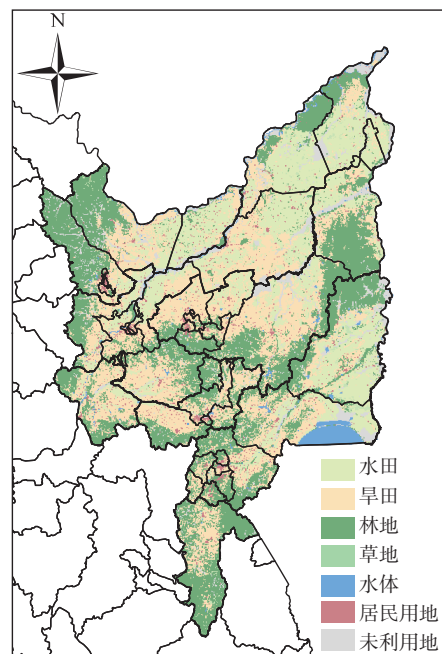
础数据。因此,使用/残留清单的建立能够提供区域尺度范围目标污染物的基础数据以及弥补新烟碱类杀虫剂在时空演变规律及数值模拟研究中存在的不足。国内外已经建立了不同尺度范围污染物的使用、排放及残留清单。1996年, Li等^[15]建立了全球第一份基于1°经度×1°纬度分辨率的工业HCH(hexachlorocyclohexane)使用清单,评估了1980—1990年工业HCH的全球使用情况。在使用清单的基础上, Li等^[16]还通过建立网格化农药排放和残留模型(simplified gridded pesticide emission and residue model, SGPERM)编制了全球范围内1°×1°分辨率的 α -HCH排放和残留清单。国内的农药清单建立工作起步相对较晚:邱兴华^[17]于2005年根据三氯杀螨醇中DDT(dichloro-diphenyl-trichloroethane)的含量以及三氯杀螨醇的主要用途和使用此类化合物的作物面积建立了中国DDT的省级尺度分布清单;贾宏亮^[18]在SGPERM模型的基础上加入了残留浓度的计算方法,并利用全球农田数据库建立了我国硫丹1/4°×1/6°分辨率的网格化使用、排放和残留清单,进一步揭示了我国土壤与大气中硫丹的来源和迁移转化规律,为我国开展硫丹的风险评估提供了基数数据;褚钰等^[19]基于清单分析法,估算了南水北调中线水源地的氮磷排放量,并对其时空演变特征进行分析,为当地农业面源污染治理以及生态保护等方面的政策制定提供了理论依据。然而,目前广泛使用的新烟碱类杀虫剂的相关清单研究工作仍处于空白。

三江平原是我国最大的淡水沼泽分布区^[14],生物多样性丰富且自然保护区数量众多。作为我国粮食主产区之一,三江平原每年粮食产量约 2.5×10^7 t,为保障国家粮食安全和稳定发挥了重要作用。然而,目前关于该区域新烟碱类杀虫剂使用及污染特征方面的研究仍略显不足,对该类物质在土壤中残留含量及时空分布的系统研究则更为缺乏。鉴于噻虫嗪是目前世界上使用较为广泛的典型新烟碱类杀虫剂之一,本文建立三江平原噻虫嗪的网格化使用和残留清单并评估其可能导致的生态风险,以期为保障区域粮食安全和生态环境安全及开展新烟碱类杀虫剂污染防控与环境修复提供基础数据和科学依据。

1 研究区概况

研究区三江平原位于黑龙江省东北部,面积约 1.09×10^5 km²,其中耕地面积为 6.68×10^4 km²。该

区域属寒温带大陆性季风气候,冬季寒冷干燥,夏季温暖湿润,年均气温约2.5℃,年平均降水量552 mm^[20]。三江平原地势平坦、土壤肥沃、土层深厚,得天独厚的自然地理条件使该区域成为我国重要粮食产区和储备基地,其作物种植类型以水稻、玉米和大豆为主。研究区土地利用分布见图1。



审图号为:GS(2024)0650号

图1 研究区土地利用分布

Fig. 1 Land use distribution of the study area

2 数据来源与研究方法

2.1 数据来源

由于缺少噻虫嗪的实际使用量数据,在进行清单建立时需要收集相关数据以对三江平原噻虫嗪的使用量进行估算。2011—2020年三江平原主要作物的种植面积数据来自《黑龙江省统计年鉴》(<http://tjj.hlj.gov.cn/>)。噻虫嗪的登记信息来自中国农药信息网(<http://www.chinapesticide.org.cn/>),并以有效成分含量作为实际用量。同时,以三江平原水稻、玉米和大豆种植面积分布为替代数据对噻虫嗪的使用量和残留量进行分配^[21]。气温数据和土壤密度数据分别来自中国天气网(<https://www.tianqi.com/>)和世界土壤数据库^[22],并通过克里金插值法获得各网格数据。

2.2 使用量估算方法

由中国农药信息网提供的农药注册信息可知,噻虫嗪在中国已用于50多种作物的病虫害防治,包

括水稻、小麦、玉米、大豆和棉花等作物。鉴于三江平原水稻、玉米和大豆占作物播种面积 95% 以上,依据种植面积并基于噻虫嗪在上述 3 类作物上的使用信息进行使用量估算。使用信息主要包括单位面积使用量(g/hm^2)、使用频率(z)以及使用噻虫嗪的作物种植面积占比(k)。此外,为确保估算数据的准确性,将 2011—2020 年的农药登记信息按照登记时间分为 2011—2015 和 2016—2020 年 2 个阶段,以减少农药产品注册信息变化造成的误差,不同阶段 k 值的差异主要受噻虫嗪注册信息及其所占市场份额变化的影响。根据农药使用说明书的建议,水稻采用喷洒使用方式,年使用频率为 2 次,玉米和大豆采用拌种使用方式,年使用频率为 1 次,详细信息见表 1。

表 1 噻虫嗪在不同作物上的使用情况
Tab. 1 Information of thiamethoxam in different crops

作物	控制虫害	使用频率/ 次	使用量/ ($\text{g}\cdot\text{hm}^{-2}$)	使用面积占比 k	
				2011—2015 年	2016—2020 年
水稻	水稻飞虱	2	18	0.066	0.081
玉米	玉米蚜虫	1	80	0.030	0.057
大豆	大豆蚜虫	1	30	0.021	0.048

噻虫嗪在三江平原的使用量估算公式为

$$U_{ij} = U_p S_{ij} z k \quad (1)$$

式中: U_{ij} 为第 j 年作物 i 的噻虫嗪总使用量, t ; U_p 为单位面积的噻虫嗪用量, g/hm^2 ; S_{ij} 为第 j 年作物 i 的种植面积, hm^2 ; z 为年使用频率; k 为使用噻虫嗪的面积比例, 其计算式为

$$k = v/n \quad (2)$$

式中: n 为作物主要害虫种类数(水稻主要害虫为二化螟、负泥虫、稻秆潜蝇和稻飞虱共 4 种; 玉米主要害虫为玉米螟、地下害虫、黏虫、蓟马、蚜虫和双斑萤叶甲共 6 种; 大豆主要害虫为大豆卷叶螟、大豆蚜虫、豆荚螟、大豆食心虫、二条叶甲和豆天蛾共 6 种)^[23-27]; v 为噻虫嗪在用于防治特定害虫的所有杀虫剂中所占的市场份额。

2.3 残留量计算方法

以噻虫嗪使用量为输入数据, 充分考虑农药使用后的损失以及作物吸收环境行为过程, 并对 SGPERM 模型进行改进, 在模型中加入农药使用后的径流排放损失和喷雾漂移损失以进行残留量的计算。由于噻虫嗪针对不同作物采用喷洒和拌种两种使用方式, 因此假定使用过程中的损失由径流

排放和喷雾漂移引起。

假设噻虫嗪的使用量为 $U_{(1)}$, 则第 1 年的损失量 $L_{(1)}$ 计算公式为

$$L_{(1)} = U_{(1)} F_1 + U_{(1)} F_2 \quad (3)$$

式中: F_1 为径流排放的损失系数, 用径流迁移的农药与使用的农药比表示; F_2 为喷雾漂移的损失系数, 用喷雾过程中喷雾液滴顺风运动飘落至应用区域之外的农药与使用的农药比表示。不同的研究表明, 新烟碱类杀虫剂迁移损失量的范围为 0.48%~6.30%^[28-30], 根据喷洒设备的不同农药喷洒漂移的损失范围为 0.1%~0.6%^[31]。选取 Frame 等^[30] 为期 1 年的研究得出的迁移损失量 1.09% 和 Peter 等^[31] 研究得到的漂移损失量平均值 0.4% 作为噻虫嗪使用后的损失系数。

噻虫嗪使用后第 1 年土壤中的残留量为:

$$R_{1(1)} = U_{(1)} - L_{(1)} - U_{(1)} T_p \quad (4)$$

式中: T_p 为植物的吸收量(本文取 5%^[5])。

假设噻虫嗪在使用后一直残留在土壤中, 则直到第 2 年耕作时的残留量可以通过以下公式给出:

$$R_{1(2)} = R_{1(1)} \exp(-\mu t) \quad (5)$$

$$\mu = \ln 2/t_{1/2} \quad (6)$$

$$t_{1/2}(T) = t_{1/2}(T_0) \exp[-(\Delta E/R)(1/T_0 - 1/T)] \quad (7)$$

式中: μ 为在土壤中的降解速率; $t_{1/2}$ 为噻虫嗪在土壤中的半衰期; $t_{1/2}(T_0)$ 为 20 °C 时噻虫嗪在土壤中的半衰期(121 d); R 为气体常数 8 314 J/mol; ΔE 为活化能(27 000 J/mol)^[32]; T 为由克里金插值法得到的每个网格的平均温度。三江平原四季温差较大, 将一年周期分为 4—10 月和 11 月—次年 3 月两部分。其中: 4—10 月的平均温度范围为 11.7~16.3 °C, 通过式(7)计算出对应的半衰期为 123~147 d; 11 月—次年 3 月的平均温度范围 -10.1~-13.8 °C, 基于噻虫嗪降解行为对温度的依存性较高, 因此, 仅考虑噻虫嗪每年 4—10 月的降解量。

假定噻虫嗪在第 2 年的使用量为 $U_{(2)}$, 那么第 2 年由使用造成的损失为

$$L_{(2)} = U_{(2)} F_1 + U_{(2)} F_2 \quad (8)$$

使用噻虫嗪后的残留量可由以下公式得到:

$$R_{2(1)} = U_{(2)} (1 - T_p) - L_{(2)} + R_{1(2)} \quad (9)$$

式中: 第 1 年(前一年)期末残留量 $R_{1(2)}$ 为当年的最小残留量, t ; 第 2 年(后一年)期初残留量 $R_{2(1)}$ 为当年的最大残留量, t 。 $R_{1(2)}$ 指上一年噻虫嗪使用后的土壤中的残留量, $R_{2(2)}$ 为基于上一年的残留量与第

2年使用后的残留量之和,即累计残留量。

通过残留量可进一步获得土壤中的噻虫嗪质量分数,计算公式^[18]为

$$W_{\text{soil}} = R/(AD\rho) \quad (10)$$

式中: A 为网格面积(10 km×10 km); D 为土壤深度(10 cm); ρ 为土壤密度,模型区域不同网格的土壤密度范围为1.20~1.54 g/cm³。当 R 为 $R_{1(2)}$ 时, W_{soil} 为土壤残留质量分数的最小值,ng/g;当 R 为 $R_{2(1)}$ 时, W_{soil} 为土壤残留质量分数的最大值,ng/g。

2.4 清单网格化

网格化是通过对农药使用量和残留量的精准分配来反映其时空分布特征的,替代数据是将农药使用量分配到网格的关键。以三江平原水稻、玉米和大豆农田分布为替代数据,应用ArcGIS 10.7构建10 km×10 km分辨率的网格,将噻虫嗪的使用和残留数据按比例分配至网格系统中,以直观地反映噻虫嗪在三江平原的使用和残留情况。

2.5 生态风险评估

生态风险评估可用于识别污染物对生态环境产生威胁的程度,为相关政策指定和风险管理提供理论依据。使用风险熵法(risk quotient)评估三江平原噻虫嗪残留对土壤生物造成的生态风险。该方法是一种半定量评估方法,通过比较污染物的实际或模型预测质量分数与预测的无效应质量分数的比值来衡量潜在的生态风险,即:将得到的风险熵值与风险标准进行比较,从而初步判断污染物产生的生态风险,是目前评估生态风险最常用的方法之一^[33-35]。采用已公布的急性半数致死质量分数(LC₅₀)来评估三江平原的典型土壤生物赤子爱胜蚓^[36]暴露于噻虫嗪的风险,计算公式如下:

$$R_Q = M_{\text{EC}}/P_{\text{NEC}} \quad (11)$$

$$P_{\text{NEC}} = w_{\text{LC}_{50}}/A_F \quad (12)$$

式中: M_{EC} 为土壤中的噻虫嗪质量分数,ng/g; P_{NEC} 为预测的无效应质量分数,ng/g; $w_{\text{LC}_{50}}$ 为噻虫嗪对该生物的半数致死质量分数^[37],ng/g; A_F 为评估因子,取1 000^[38]。 R_Q 为风险熵值, $R_Q < 0.1$ 为低风险, $0.1 \leq R_Q < 1$ 为中风险, $R_Q \geq 1$ 为高风险^[39]。

3 结果与分析

3.1 噻虫嗪的使用情况

2011—2020年三江平原噻虫嗪使用量呈动态增长趋势,使用量由每年约6.99 t增长至9.61 t(图2),

其累计使用量约为85.6 t(折纯)。由图3可知,使用量较大的区域分布在三江平原中部、西南部和东南部,而西北部、东部以及南部耕地面积少,对农药的需求也较小。

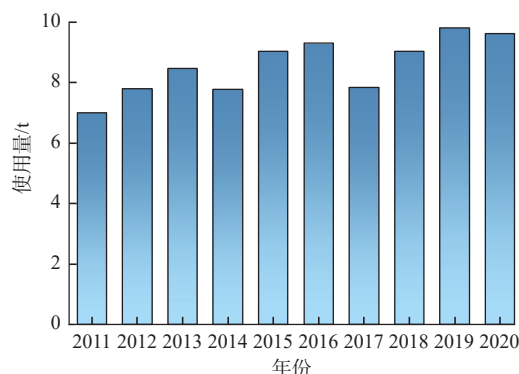
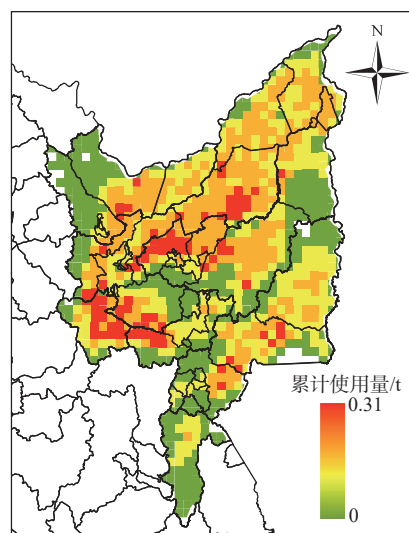


图2 2011—2020年三江平原噻虫嗪年使用量
Fig. 2 Annual usage of thiamethoxam in the Sanjiang Plain from 2011 to 2020



审图号为:GS(2024)0650号

图3 2011—2020年三江平原噻虫嗪10 km×10 km分辨率网格化使用清单

Fig. 3 Gridded inventory of thiamethoxam usage at 10 km×10 km resolution in the Sanjiang Plain from 2011 to 2020

基于统计数据验证使用量估算结果的准确性。2011—2020年,黑龙江省农药累计使用量为 7.8×10^5 t,约占全国用量的4.7%(<https://www.stats.gov.cn/>)。秦萌等^[40]研究结果表明,2011—2020年我国新烟碱类杀虫剂累计使用量约为 4.0×10^4 t(折纯),根据新烟碱类杀虫剂用量占比以及噻虫嗪近十年的市场份额^[41-43],可计算出黑龙江省新烟碱类杀虫剂累计使用量约为 1.88×10^3 t(折纯),其中噻虫嗪约为280 t(折纯)。通过三江平原占黑龙江省的耕地比例可推测该区域噻虫嗪的累计使用量约为

90 t, 与本文的估算基本相符。

3.2 噻虫嗪的残留情况

2011—2020 年三江平原噻虫嗪的残留和排放趋势见图 4。噻虫嗪通过喷雾飘移和地表径流排放造成的损失约 0.97 t, 年损失量变化幅度较小, 平均每年在 0.10 t 左右。连续多年的使用导致了其在土壤中的积累, 2011—2020 年三江平原土壤中噻虫嗪的累计残留量由 6.55 t 增加到 13.1 t。2020 年噻虫嗪在三江平原 10 km×10 km 分辨率的网格化残留分布见图 5, 残留量较大的区域主要分布在三江平原中部、西南部和东南部。

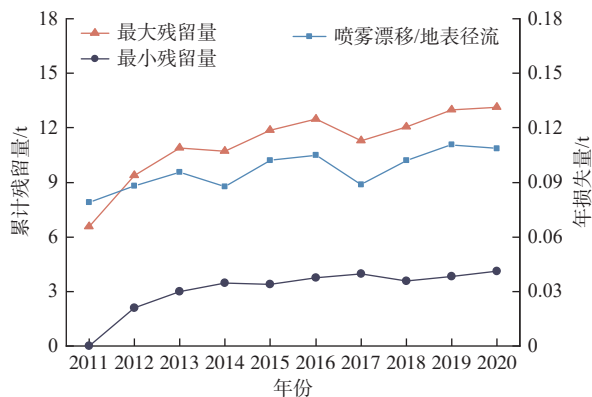
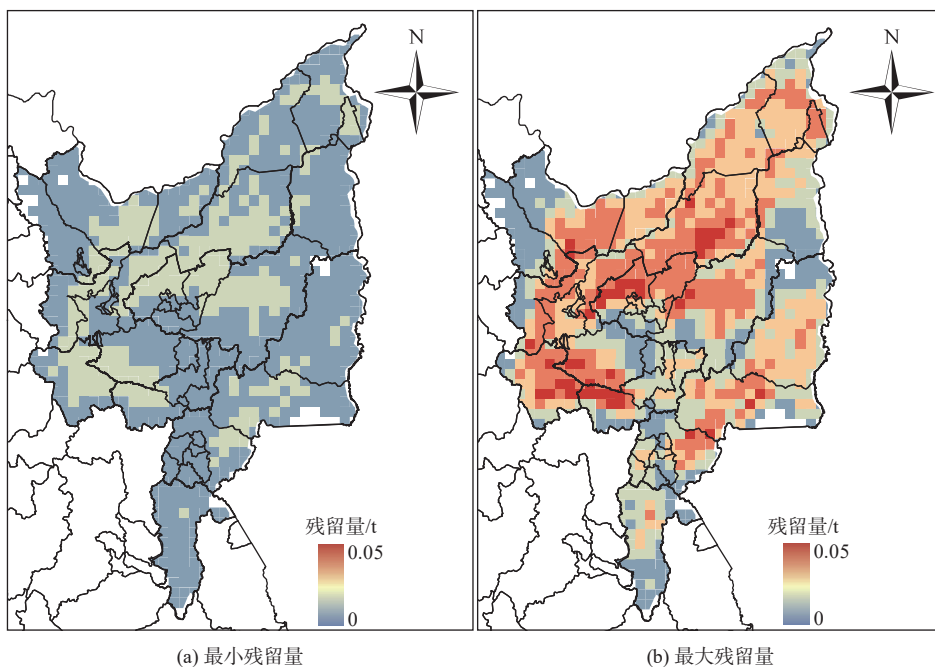


图 4 2011—2020 年三江平原土壤中噻虫嗪损失和残留趋势
Fig. 4 Trends in thiamethoxam losses and residues in soils in the Sanjiang Plain from 2011 to 2020



审图号为: GS(2024)0650 号
图 5 2020 年三江平原土壤中噻虫嗪的残留量

Fig. 5 Residues of thiamethoxam in soils of Sanjiang Plain in 2020

3.3 土壤中噻虫嗪质量分数估算

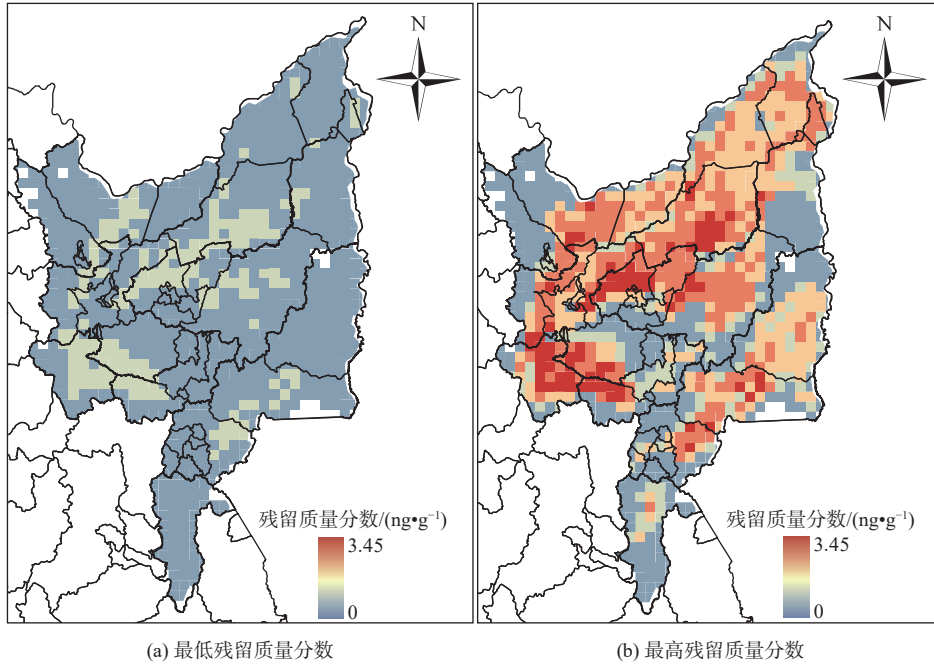
由图 6 可知, 2020 年三江平原农田土壤中噻虫嗪的空间质量分数范围为 0~3.45 ng/g, 残留质量分数较高的区域主要位于中部、西南部和东南部。为了进一步评估本文所建立残留清单的准确性, 将其与 Liu 等^[4]在三江平原七星河流域的土壤监测数据进行对比。结果表明, 七星河流域土壤中噻虫嗪的质量分数监测值范围为 0.52~29.30 ng/g(平均值 3.65 ng/g, 中位数 1.31 ng/g)与该区域空间质量分数的模拟值 1.49 ng/g 不存在数量级上的差异, 证明了本文所建立残留清单的可靠性。由于模型数据代表每个网格单元土壤中噻虫嗪的空间平均质量分数, 而监测的土壤样本仅代表空间中的一个点, 这可能是产生误差的主要原因。

3.4 生态风险

三江平原土壤中噻虫嗪残留的生态风险分布见图 7。2011 年, 三江平原噻虫嗪残留对赤子爱胜蚓的 R_Q 范围为 0~0.17(平均值 0.04), 中等以上风险区域为 9.65%; 而 2020 年, 三江平原噻虫嗪残留对赤子爱胜蚓的 R_Q 范围为 0~0.35(平均值 0.09), 超过 36.7% 的区域为中等以上风险。研究结果表明, 随着三江平原噻虫嗪的多年连续使用, 其对生态环境构成的潜在威胁将逐渐增大。同时, 噻虫嗪的水溶性也会使其能够通过地表径流而进入水环境中。Bonmatin 等^[44]通过对土壤、水体和沉积物样本中新烟碱类杀虫剂进行调查, 证实了这 3 种环境介质中的新烟碱类杀虫剂含量存在正相关关系。此外, 水

环境中新烟碱类杀虫剂的存在会对水生生物产生威胁。例如,Chen等^[45]采集了中国东部沿海地区16条河流中的水体样本,发现有27%和84%的河水样本中的新烟碱类杀虫剂超过了急性和慢性生

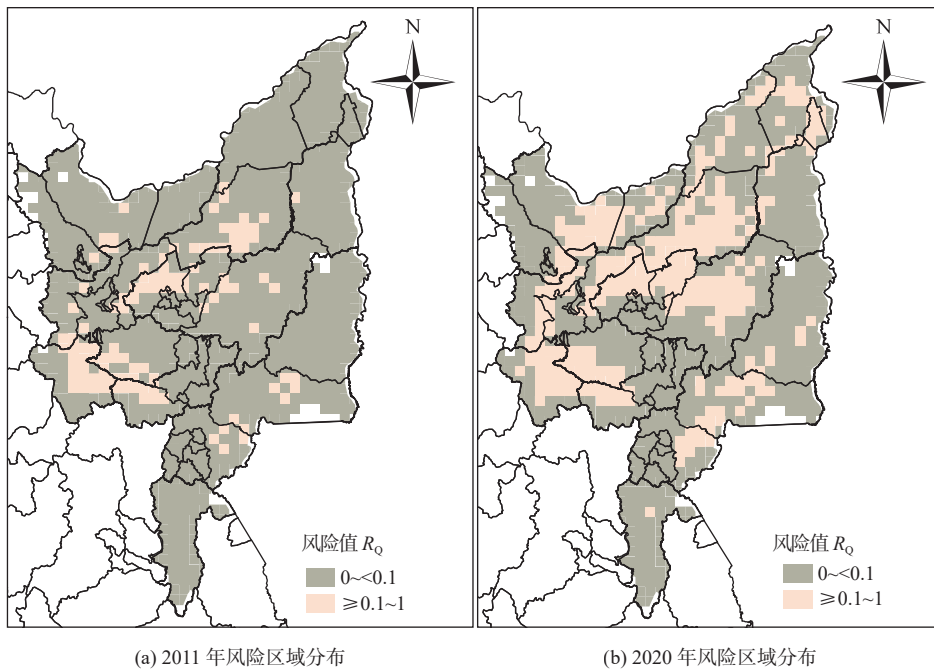
态风险的阈值。因此,未来仍需要全面评估新烟碱类杀虫剂对整个生态系统造成的潜在影响,并采用多种环境介质的联合防控来防范其对生态环境产生的风险。



审图号为:GS(2024)0650号

图6 2020年三江平原土壤中噻虫嗪的残留质量分数

Fig. 6 Residual mass fractions of thiamethoxam in soils of Sanjiang Plain in 2020



审图号为:GS(2024)0650号

图7 三江平原噻虫嗪的风险区域分布

Fig. 7 Risk regional distribution of thiamethoxam in the Sanjiang Plain

4 讨论

4.1 噻虫嗪使用量变化

2011—2020年三江平原噻虫嗪使用量呈动态

增长趋势(图2),这可能与该区域作物种植面积及噻虫嗪所占市场份额变化密切相关。例如,位于三江平原的鹤岗、双鸭山、佳木斯、七台河和鸡西等

市,作物总播种面积由 2011 年的 $2.55 \times 10^6 \text{ hm}^2$ 增长至 2020 年的 $3.25 \times 10^6 \text{ hm}^2$,增长了约 27.5%。此外,随着近年来农药品种不断优化,新烟碱类杀虫剂等新型低毒农药的使用量逐年扩大。据统计,2011—2020 年新烟碱类杀虫剂的全国使用量(折纯)从每年不足 2000 t 增长至每年超过 7000 t^[40]。

4.2 噻虫嗪残留量变化

三江平原位于高纬度地区,冬季寒冷漫长,这将导致噻虫嗪在环境中的降解速率下降^[46],长期使用后则会造成其在土壤环境中不断累积。例如,在不同地区的两项实验研究^[33,47]表明,噻虫嗪在印度的半衰期为 10~20 d,但在加拿大安大略省高纬度地区的降解时间则超过半年。除温度影响外,残留量又直接受到使用量的影响,对噻虫嗪投入量较大的区域也会产生较大残留。因此,长期使用和降解缓慢是影响三江平原残留量的主要因素。

4.3 三江平原生态风险

2011 年三江平原仅有 9.65% 左右的区域对赤子爱胜蚓产生中等以上风险,而 2020 年中等以上风险区域则扩大至 36.7%(图 7)。风险评估结果表明,三江平原噻虫嗪对生态环境构成的潜在暴露风险呈逐渐增加趋势,这会对土壤生态系统产生不利影响。Tan 等^[48]综合调查了海南热带水稻-蔬菜轮作土壤中的新烟碱类杀虫剂污染现状,发现超过 45% 的土壤样本处于高风险状态。花莉等^[49]的研究报道了陕西土壤中新烟碱类杀虫剂的残留造成该省 80% 以上的土壤处于中高风险,与本文的结果相似。因此,新烟碱类杀虫剂的使用对土壤环境造成的生态风险是农业管理部门亟待解决的问题。

4.4 不确定性分析

三江平原噻虫嗪残留量的计算过程中可能会存在以下不确定因素:(1)噻虫嗪在土壤环境中的半衰期。本文的半衰期基于一阶动力学模型计算得出,忽视了其他因素对半衰期的影响,这将与实际的半衰期存在偏差。(2)作物吸收量。根据作物的不同类型以及个体间的差异,新烟碱类杀虫剂的有效成分吸收量在 1.60%~28.0%^[7],本文使用平均值进行计算可能会使结果产生误差。(3)地表径流量。本文的地表径流损失数据来自文献的研究值,忽视了不同区域自然条件、土壤性质、高程和降水等实际情况,这会造成计算结果的偏差。(4)喷雾漂移量。农药使用过程中采用的喷洒工具以及喷洒时的风向和风速均会在一定程度上对农药的喷雾漂移产生

影响,取平均值会使计算结果产生误差。(5)淋溶作用。由于噻虫嗪具有较高的水溶性,进入土壤后部分有效成分可能会随水流产生垂向迁移,本文在进行残留量计算时没有考虑此过程,这可能会导致结果产生偏差。不确定性分析是评估清单可靠性的一项重要步骤,该方法根据每个参数的活动水平和概率分布计算出可能的结果范围,并已应用于污染物清单的不确定性分析中^[50-51]。本文采用 Monte Carlo 模拟方法量化不确定性,对每个变量进行 10 000 次随机抽样操作,以 95% 的置信区间计算三江平原噻虫嗪残留量的不确定性范围,并分析计算参数的敏感度,结果表明,模拟的 2020 年三江平原噻虫嗪最大残留量范围为 12.7~13.4 t,不确定性范围在 -3.15%~2.24%。各参数敏感度见图 8,在影响三江平原噻虫嗪残留量的参数中,土壤中的半衰期敏感度最高,是最主要的影响因素。因此,在进行残留量计算时,可根据参数敏感度进行残留量计算的调控与优化以降低结果的不确定性。

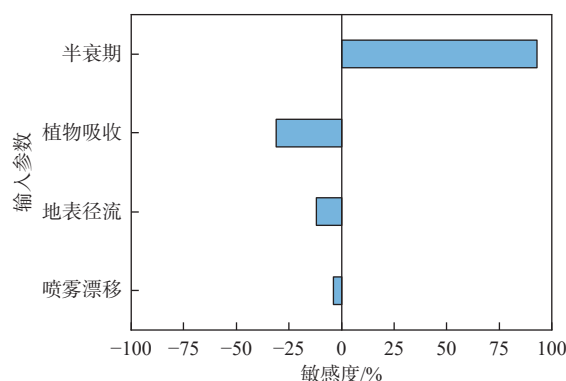


图 8 三江平原噻虫嗪残留量计算各输入参数的敏感度
Fig. 8 Sensitivity of each input parameter for thiamethoxam residue calculation in the Sanjiang Plain

5 结论

通过建立新烟碱类杀虫剂使用量估算方法以及应用改进的 SGPERM 模型,估算了 2011—2020 年三江平原噻虫嗪的使用量和残留量,并建立了三江平原噻虫嗪 $10 \text{ km} \times 10 \text{ km}$ 分辨率的网格化使用和残留清单,同时对三江平原土壤中噻虫嗪残留进行了生态风险评估,主要结论如下:

噻虫嗪使用量受作物种植面积以及噻虫嗪市场份额增加的影响。2011—2020 年三江平原噻虫嗪使用量呈动态增长趋势,2020 年的使用量相比 2011 年增长了 37.5%。研究区域内使用量的空间差异较大,使用量较大的区域主要分布在三江平原中

部、西南部和东南部。

噻虫嗪的残留量主要与使用量有关,三江平原高残留区域分布与使用量较大的区域基本一致。根据残留量计算得出的土壤中噻虫嗪残留质量分数范围与实际土壤监测数据吻合度较高,证明了使用清单建立方法及改进模型的可靠性。

基于风险熵法进行了生态风险评估,结果表明该区域土壤中的噻虫嗪残留对赤子爱胜蚓等土壤生物具有一定的生态风险,应引起重点关注。

参考文献:

- [1] 刘志琨. 农业水环境系统中新烟碱类杀虫剂的污染特征及其降解机理研究[D]. 哈尔滨: 东北农业大学, 2023.
- [2] WU R L, HE W, LI Y L, et al. Residual concentrations and ecological risks of neonicotinoid insecticides in the soils of tomato and cucumber greenhouses in Shouguang, Shandong Province, East China[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 738: 140248. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.140248.
- [3] ASEPERI A K, BUSQUETS R, HOODA P S, et al. Behaviour of neonicotinoids in contrasting soils[J]. *Journal of Environmental Management*, 2020, 276: 111329. DOI: 10.1016/j.jenvman.2020.111329.
- [4] ZHANG C, YI X H, CHEN C, et al. Contamination of neonicotinoid insecticides in soil-water-sediment systems of the urban and rural areas in a rapidly developing region: Guangzhou, South China[J]. *Environment International*, 2020, 139: 105719. DOI: 10.1016/j.envint.2020.105719.
- [5] HUANG C S, WEN P C, HU G C, et al. Residues of neonicotinoid insecticides in surface sediments in lakes and rivers across Jiangsu Province: Impact of regional characteristics and land use types[J]. *Environmental Pollution*, 2022, 313: 120139. DOI: 10.1016/j.envpol.2022.120139.
- [6] YU Z M, LI X F, WANG S R, et al. The human and ecological risks of neonicotinoid insecticides in soils of an agricultural zone within the Pearl River Delta, South China[J]. *Environment Pollution*, 2021, 284: 117358. DOI: 10.1016/j.envpol.2021.117358.
- [7] LIU Z K, ZHANG L M, ZHANG Z L, et al. A review of spatiotemporal patterns of neonicotinoid insecticides in water, sediment, and soil across China[J]. *Environment Science and Pollution Research*, 2022, 29(37): 55336-55347. DOI: 10.1007/s11356-022-21226-6.
- [8] 崔嵩, 李斐, 刘志琨. 新烟碱类杀虫剂污染特征及其毒性效应[J]. *中国环境科学*, 2023, 43(1): 361-373. DOI: 10.19674/j.cnki.issn1000-6923.2023.0005.
- [9] LIU Z K, CUI S, ZHANG L M, et al. Occurrence, variations, and risk assessment of neonicotinoid insecticides in Harbin section of the Songhua River, northeast China[J]. *Environmental Science and Ecotechnology*, 2021, 8: 100128. DOI: 10.1016/j.ese.2021.100128.
- [10] ZHOU Y, GUO J Y, WANG Z K, et al. Levels and inhalation health risk of neonicotinoid insecticides in fine particulate matter (PM_{2.5}) in urban and rural areas of China[J]. *Environment International*, 2020, 142: 105822. DOI: 10.1016/j.envint.2020.105822.
- [11] 张光辉, 刘中培, 连英立, 等. 河北平原地下水水质变及农药化肥使用量变化影响[J]. *南水北调与水利科技*, 2009, 7(2): 50-54. DOI: 10.3969/j.issn.1672-1683.2009.02.0171.
- [12] CHEN Y C, ZHANG L, HU H, et al. Neonicotinoid pollution in marine sediments of the East China Sea[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 842: 156658. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2022.156658.
- [13] GU S J, LI Z, YANG L Q, et al. The distribution and human health risk assessment of eight neonicotinoid residues in agricultural soils from four provinces, south China[J]. *Chemosphere*, 2023, 322: 138143. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2023.138143.
- [14] LIU Z K, CUI S, FU Q, et al. Transport of neonicotinoid insecticides in a wetland ecosystem: Has the cultivation of different crops become the major sources?[J]. *Journal of Environmental Management*, 2023, 339: 117838. DOI: 10.1016/j.jenvman.2023.117838.
- [15] LI Y F, MCMILLAN A, SCHOLTZ M T. Global HCH usage with 1°×1° longitude/latitude resolution [J]. *Environmental Science & Technology*, 1996, 30: 3525-3533. DOI: 10.1021/es960312v.
- [16] LI Y F, VENKATESH S, Li D. Modeling global emissions and residues of pesticides[J]. *Environmental Modeling & Assessment*, 2004, 9(4): 237-243. DOI: 10.1007/s10666-005-3151-9.
- [17] 邱兴华. 太湖地区大气中的有机氯农药[D]. 北京:

- 北京大学, 2005.
- [18] 贾宏亮. 疏丹在中国土壤大气中空间分布及传播的研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2010.
- [19] 褚钰, 朱九龙, 付景保. 南水北调中线水源地农业面源污染时空演化特征[J]. *南水北调与水利科技(中英文)*, 2023, 21(4): 800-809. DOI: [10.13476/j.cnki.nsbdkq.2023.0078](https://doi.org/10.13476/j.cnki.nsbdkq.2023.0078).
- [20] 徐英德, 裴久渤, 李双异. 东北黑土地不同类型区主要特征及保护利用对策[J]. *土壤通报*, 2023, 54(2): 495-504. DOI: [10.19336/j.cnki.trtb.2023022102](https://doi.org/10.19336/j.cnki.trtb.2023022102).
- [21] XUAN F, DONG Y, LI J Y, et al. Mapping crop type in Northeast China during 2013–2021 using automatic sampling and tile-based image classification[J]. *International Journal of Applied Earth Observation and Geoinformation*, 2023, 117: 103178. DOI: [10.1016/j.jag.2022.103178](https://doi.org/10.1016/j.jag.2022.103178).
- [22] 联合国粮农组织. 世界土壤数据库 [DB]. <http://westdc.westgis.ac.cn/data/611f7d50-b419-4d14-b4dd-4a944b141175>.
- [23] 张齐凤, 王春荣, 司兆胜, 等. 2020年黑龙江省水稻病虫害发生特点与分析[J]. *农业科技通讯*, 2021(4): 215-218.
- [24] 张鑫, 任彬元, 宋显东, 等. 东北三省水稻病虫草发生为害和防控现状分析[J]. *中国植保导刊*, 2018, 38(8): 61-66.
- [25] 刘唐. 关于黑龙江大豆田常见病虫害种类及防治方法的探讨[J]. *农民致富之友*, 2017, (23): 163.
- [26] 张鑫, 杨普云, 任彬元, 等. 2008—2019年东北三省玉米病虫草害发生为害和防治情况分析[J]. *中国植保导刊*, 2021, 41(10): 83-90. DOI: [10.3969/j.issn.1672-6820.2021.10.019](https://doi.org/10.3969/j.issn.1672-6820.2021.10.019).
- [27] 刘万才, 刘振东, 黄冲, 等. 近10年农作物主要病虫害发生危害情况的统计和分析[J]. *植物保护*, 2016, 42(5): 1-9. DOI: [10.3969/j.issn.0529-1542.2016.05.001](https://doi.org/10.3969/j.issn.0529-1542.2016.05.001).
- [28] WETTSTEIN F E, KASTEEL R, DELGADO M F G, et al. Leaching of the neonicotinoids thiamethoxam and imidacloprid from sugar beet seed dressings to subsurface tile drains[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2016, 64(33): 6407-6415. DOI: [10.1021/acs.jafc.6b02619](https://doi.org/10.1021/acs.jafc.6b02619).
- [29] CHRETIEN F, GIROUX I, THERIAULT G, et al. Surface runoff and subsurface tile drain losses of neonicotinoids and companion herbicides at edge-of-field[J]. *Environmental Pollution*, 2017, 224: 255-264. DOI: [10.1016/j.envpol.2017.02.002](https://doi.org/10.1016/j.envpol.2017.02.002).
- [30] FRAME S T, PEARSONS K A, ELKIN K R, et al. Assessing surface and subsurface transport of neonicotinoid insecticides from no-till crop fields[J]. *Journal of Environmental Quality*, 2021, 50(2): 476-484. DOI: [10.1002/jeq2.20185](https://doi.org/10.1002/jeq2.20185).
- [31] PETER K J, MERETE H O. Spray mass balance in pesticide application: A review[J]. *Crop Protection*, 2014, 61: 23-31. DOI: [10.1016/j.cropro.2014.03.006](https://doi.org/10.1016/j.cropro.2014.03.006).
- [32] BANERJEE K, PATIL S H, DASGUPTA S, et al. Sorption of thiamethoxam in three Indian soils[J]. *Journal of Environmental Science and Health Part B-pesticides Food Contaminants and Agricultural Wastes*, 2008, 43(2): 151-156. DOI: [10.1080/03601230701795130](https://doi.org/10.1080/03601230701795130).
- [33] SHARMA B M, BECANOVA J, SCHERINGER M, et al. Health and ecological risk assessment of emerging contaminants (pharmaceuticals, personal care products, and artificial sweeteners) in surface and groundwater (drinking water) in the Ganges River basin, India[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 646: 1459-1467. DOI: [10.1016/j.scitotenv.2018.07.235](https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.07.235).
- [34] JIA Q P, CAI Y P, ZHANG X D, et al. Spatial distribution and ecological risks of neonicotinoid insecticides for an urban tidal stream of Guangzhou City, South China[J]. *Ecological Indicators*, 2022, 146: 109836. DOI: [10.1016/j.ecolind.2022.109836](https://doi.org/10.1016/j.ecolind.2022.109836).
- [35] WANG L F, WANG Y F, LI H, et al. Occurrence, source apportionment and source-specific risk assessment of antibiotics in a typical tributary of the Yellow River basin[J]. *Journal of Environmental Management*, 2021, 305: 114382. DOI: [10.1016/j.jenvman.2021.114382](https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2021.114382).
- [36] 卢明珠, 吕宪国, 管强, 等. 三江平原碟形洼地中陆栖蚯蚓的分布及影响因素[J]. *湿地科学*, 2015, 13(5): 563-568. DOI: [10.13248/j.cnki.wetlandsci.2015.05.007](https://doi.org/10.13248/j.cnki.wetlandsci.2015.05.007).
- [37] 赫特福德大学农药与环境研究所. 农药特性数据库 [DB]. <http://sitem.herts.ac.uk/aeru/ppdb/en/Reports/631.htm>.
- [38] SUN X L, LIU M, MENG J W, et al. Residue level, occurrence characteristics and ecological risk of pes-

- ticides in typical farmland-river interlaced area of Baiyang Lake upstream, China[J]. *Scientific Reports*, 2022, 12(1): 12049. DOI: [10.1038/s41598-022-16088-4](https://doi.org/10.1038/s41598-022-16088-4).
- [39] NAUMANN T, BENTO C P M, WITTMANN A, et al. Occurrence and ecological risk assessment of neonicotinoids and related insecticides in the Bohai Sea and its surrounding rivers, China[J]. *Water Research*, 2022, 209: 117912. DOI: [10.1016/j.watres.2021.117912](https://doi.org/10.1016/j.watres.2021.117912).
- [40] 秦萌, 任宗杰, 张帅, 等. 从“农药零增长行动”看“农药减量化”发展[J]. *中国植保导刊*, 2021, 41(11): 89-94. DOI: [10.3969/j.issn.1672-6820.2021.11.025](https://doi.org/10.3969/j.issn.1672-6820.2021.11.025).
- [41] 朴秀英, 嵇莉莉, 林荣华, 等. 新烟碱类杀虫剂登记与管理现状分析[J]. *中国植保导刊*, 2015, 35(3): 70-74. DOI: [10.3969/j.issn.1672-6820.2015.03.018](https://doi.org/10.3969/j.issn.1672-6820.2015.03.018).
- [42] 谭丽超, 程燕, 卜元卿, 等. 新烟碱类农药在我国的登记现状及对蜜蜂的初级风险评估[J]. *生态毒理学学报*, 2019, 14(6): 292-303. DOI: [10.7524/AJE.1673-5897.20181116001](https://doi.org/10.7524/AJE.1673-5897.20181116001).
- [43] 毛连纲, 徐冬梅, 袁善奎, 等. 基于推荐用量分析我国新烟碱类杀虫剂的登记现状[J]. *植物保护*, 2020, 46(5): 200-210. DOI: [10.16688/j.zwbh.2019297](https://doi.org/10.16688/j.zwbh.2019297).
- [44] BONMATIN J M, NOOME D A, MORENO H, et al. A survey and risk assessment of neonicotinoids in water, soil and sediments of Belize[J]. *Environmental Pollution*, 2019, 249: 949-958. DOI: [10.1016/j.envpol.2019.03.099](https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.03.099).
- [45] CHEN Y C, ZANG L, LIU M D, et al. Ecological risk assessment of the increasing use of the neonicotinoid insecticides along the east coast of China[J]. *Environment International*, 2019, 127: 550-557. DOI: [10.1016/j.envint.2019.04.010](https://doi.org/10.1016/j.envint.2019.04.010).
- [46] BONMATIN J M, GIORIO C, GIROLAMI V, et al. Environmental fate and exposure; neonicotinoids and fipronil[J]. *Environment Science and Pollution Research*, 2015, 22(1): 35-67. DOI: [10.1007/s11356-014-3332-7](https://doi.org/10.1007/s11356-014-3332-7).
- [47] SCHAAFSMA A, LIMAY-RIOS V, XUE Y G, et al. Field-scale examination of neonicotinoid insecticide persistence in soil as a result of seed treatment use in commercial maize (corn) fields in southwestern Ontario[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2016, 35(2): 295-302. DOI: [10.1002/etc.3231](https://doi.org/10.1002/etc.3231).
- [48] TAN H D, WANG C M, ZHU S P, et al. Neonicotinoids in draining micro-watersheds dominated by rice-vegetable rotations in tropical China: Multimedia occurrence, influencing factors, transport, and associated ecological risks[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2023, 446: 130716. DOI: [10.1016/j.jhazmat.2022.130716](https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2022.130716).
- [49] 花莉, 常江峰, 马倩. 陕西农田土壤烟碱类农药污染现状及风险评估[J]. *环境污染与防治*, 2022, 44(12): 1632-1638. DOI: [10.15985/j.cnki.1001-3865.2022.12.015](https://doi.org/10.15985/j.cnki.1001-3865.2022.12.015).
- [50] ZHANG Y X, TAO S. Global atmospheric emission inventory of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) for 2004[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(4): 812-819. DOI: [10.1016/j.atmosenv.2008.10.050](https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.10.050).
- [51] ZHOU M M, JIANG W, GAO W D, et al. A high spatiotemporal resolution anthropogenic VOC emission inventory for Qingdao City in 2016 and its ozone formation potential analysis[J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2020, 139: 147-160. DOI: [10.1016/j.psep.2020.03.040](https://doi.org/10.1016/j.psep.2020.03.040).

Development of the gridded usage and residues inventory of thiamethoxam and ecological risk assessment in the Sanjiang Plain

CUI Song^{1,2}, LI Fei^{1,2}, JIA Chaoyang^{1,2}, JIA Hongliang³, LI Yifan^{1,2}

(1. School of Water Conservancy and Civil Engineering, Northeast Agricultural University, Harbin 150030, China; 2. Research Center for Eco-Environment Protection of Songhua River Basin, Northeast Agricultural University, Harbin 150030, China; 3. School of Environmental Science and Engineering, Dalian Maritime University, Dalian 116026, China)

Abstract: Agricultural non-point source pollution compromises the security of water and soil resources in China, making it imperative to understand the distribution characteristics of such pollution in specific areas to effectively

implement environmental protection measures. As a principal grain-producing area in China, the Sanjiang Plain is critical for ensuring national food security and stability, boasting an annual grain output of approximately 2.5×10^7 t. However, the body of research addressing the use and pollution characteristics of neonicotinoid insecticides in this region remains limited, with inadequate in systematic studies on the residual mass fraction and distribution of these substances in the soil.

This study concentrates on the Sanjiang Plain, a significant grain-producing region in China, and selects the widely used neonicotinoid insecticide, imidacloprid, as the subject for conducting related inventory research. An estimation method for neonicotinoid insecticides was formulated and applied to calculate the thiamethoxam use in the Sanjiang Plain from 2011 to 2020. Additionally, rice, maize, and soybean cultivation areas in the Sanjiang Plain served as surrogate data to establish a gridded use inventory of thiamethoxam in the region with a resolution of $10 \text{ km} \times 10 \text{ km}$. Furthermore, the usage inventory served as input data, and an enhanced simplified gridded pesticide emission and residue model, which thoroughly incorporated environmental behavior processes, was employed to develop residue and soil mass fraction inventories. Finally, the risk quotient methodology was employed to assess the potential ecological risks of neonicotinoid pesticides in soil to non-target species.

The results showed that: (1) the cumulative usage of thiamethoxam in the Sanjiang Plain from 2011 to 2020 was about 86 t, and the loss through spray drift and runoff discharge was about 1.3 t. In terms of spatial distribution, hotspots of thiamethoxam usage were identified in the central, southwestern, and southeastern parts of the Sanjiang Plain. In contrast, the northwestern, eastern, and southern parts of the cultivated land, being smaller in area, exhibited a lower demand for pesticides. (2) Years of consistent usage resulted in the accumulation of neonicotinoid insecticides in the soil, with the cumulative residue of thiamethoxam in the Sanjiang Plain's soil increasing from 7.0 to 13.1 tons between 2011 and 2020, marking an approximate 0.8-fold increase. To address potential uncertainties in the thiamethoxam residue calculation process, an analysis of these uncertainties and the sensitivity of the parameters is undertaken, aiming to identify the primary factors influencing residue levels and to refine and optimize the calculation process, thereby reducing result uncertainties. (3) Spatial mass fraction of neonicotinoid insecticides in the surface soil of each grid were estimated, based on residue levels, ranging from 0 to 3.45 ng/g. To assess the accuracy of the residue inventory established herein, the simulated values were juxtaposed with actual soil monitoring concentration data, affirming the inventory's reliability. (4) Typical organisms of the Sanjiang Plain are already under threat from soil thiamethoxam residues, and the regional extent of this risk, along with the potential threat to the ecosystem, is gradually escalating, necessitating consideration.

The establishment of the usage inventory and the refined emission/residue inventory model effectively elucidates the spatial and temporal dynamics of pesticide use and residue. This provides fundamental data and a scientific foundation for formulating pesticide pollution control strategies, relevant policies, and action plans, and also offers a technical methodology for developing a gridded pesticide inventory.

Key words: thiamethoxam; usage inventory; residues inventory; Sanjiang Plain; ecological risk