

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

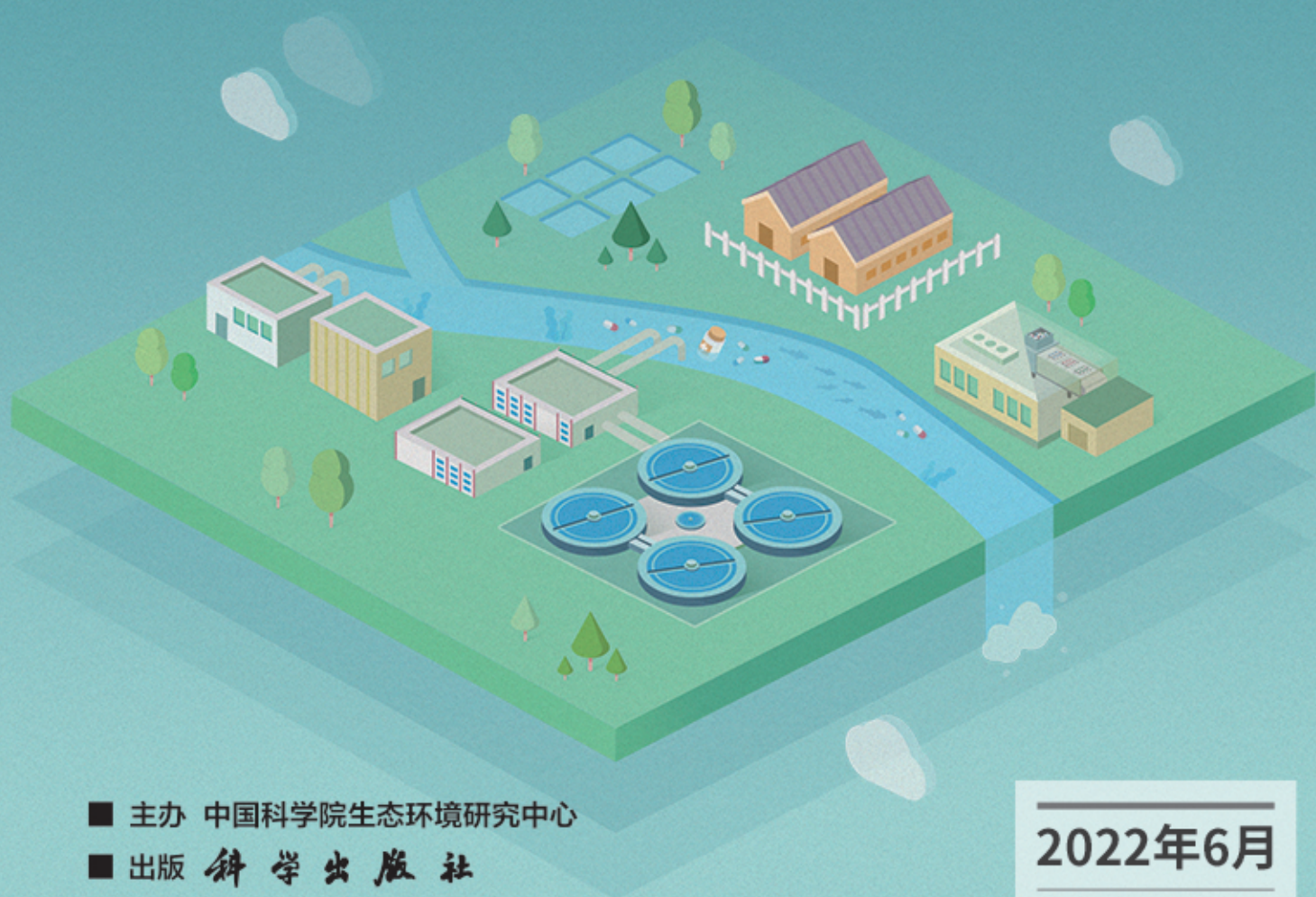
环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价

武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年6月

第43卷 第6期
Vol.43 No.6

目次

COVID-19 管控期间气象条件变化对京津冀 PM _{2.5} 浓度影响	邱雨露, 陈磊, 朱佳, 马志强, 李梓铭, 郭恒, 唐颖潇 (2831)
新冠疫情管控措施对郑州市 PM _{2.5} 浓度、粒径分布、组分和来源的影响	黄兵役, 王申博, 和兵, 薛若雨, 高更宇, 张瑞芹 (2840)
COVID-19 管控期间苏州市 PM _{2.5} 中金属元素浓度变化及来源解析	缪青, 杨倩, 吴也正, 魏恒, 周民锋, 张晓华, 邹强 (2851)
2015 ~ 2019 年南京北郊碳质气溶胶组成变化	谢添, 曹芳, 章炎麟, 林煜棋, 范美益, 宋文怀, 鲍孟盈, 项妍琨, 赵祝钰, 杨笑影, 谢锋, 张煜炯, 俞浩然, 张子金, 邢佳莉 (2858)
基于受体和化学传输的综合模型解析重庆 PM _{2.5} 来源	彭超, 李振亮, 曹云攀, 蒲茜, 方维凯, 王晓宸, 汪凌韬 (2867)
保定市冬季 PM _{2.5} 的氧化潜势特征及其影响来源分析	吴继炎, 杨池, 张春燕, 范美益, 吴爱坪, 章炎麟 (2878)
南京江北新区 PM _{2.5} 中水溶性有机氮的污染特征及其来源	关璐, 丁铨, 张毓秀, 胡建林, 于兴娜 (2888)
广西十万大山背景点 PM _{2.5} 中非极性有机气溶胶组成及来源解析	邢佳莉, 曹芳, 王谦, 张煜炯, 章炎麟 (2895)
大气多环芳烃区域迁移转化模型比较与关键影响因素: 以京津冀地区为例	张馨露, 刘世杰, 韩美丽, 苏超, 张志鹏, 马琳琳, 李洋, 程苗苗 (2906)
基于过程分析的京津冀区域典型城市臭氧成因	唐颖潇, 姚青, 蔡子颖, 丁净, 樊文雁, 杨旭, 韩素芹 (2917)
天津市 PM _{2.5} -O ₃ 复合污染特征及气象影响分析	肖致美, 李源, 孔君, 李鹏, 蔡子颖, 高璟, 徐虹, 戴运峰, 邓小文 (2928)
2016 ~ 2020 年山东省空气质量时空分布特征及影响因素分析	周梦鸽, 杨依, 孙媛, 张凤英, 李永华 (2937)
河南省臭氧污染趋势特征及敏感性变化	晏洋洋, 尹沙沙, 何秦, 秦凯, 张瑞芹 (2947)
热带气旋对珠三角秋季臭氧污染的影响	赵伟, 吕梦瑶, 卢清, 高博, 梁小明, 刘明, 孙家仁, 陈来国, 范绍佳 (2957)
武汉市夏季大气挥发性有机物实时组成及来源	苏维峰, 孔少飞, 郑煌, 陈楠, 祝波, 全继宏, 祁士华 (2966)
运城市夏季大气挥发性有机物污染特征及来源解析	温肖宇, 赵文婷, 罗淑贞, 张强, 王姝涛, 马俊杰, 刘新罡 (2979)
我国地表水新烟碱类杀虫剂对水生生物安全的威胁	范丹丹, 刘红玲, 杨柳燕 (2987)
长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价	武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌 (2996)
内蒙古东北部地区地下-地表饮用水源多环芳烃污染特征与风险	张坤峰, 昌盛, 付青, 樊月婷, 王思瑞, 孙兴滨, 王山军 (3005)
不同尺度土地利用方式对地表水环境质量的影响及驱动机制	宋静雯, 张学霞, 姜东旸, 赵丞豪, 李鹏飞 (3016)
高原湖泊周边浅层地下水: 氮素时空分布及驱动因素	李桂芳, 杨恒, 叶远行, 陈清飞, 崔荣阳, 陈安强, 张丹 (3027)
青海湖沉积物重金属分布及其潜在生态风险分析	张雅然, 车霏霏, 付正辉, 许野, 李薇 (3037)
东江湖表层沉积物重金属污染特征与潜在生态风险评价	赵晓亮, 李响, 卢洪斌, 卢少勇, 王涛, 张森霖, 国晓春, 张静, 弥启欣, 刘晓贺, 宋书峰 (3048)
湖泊沉积物有机磷释放动力学特征及水质风险	刘哲哲, 倪兆奎, 刘思儒, 李晓秀, 王圣瑞 (3058)
长三角一体化示范区青浦区水体表层沉积物有机质分布特征、来源解析及污染评价	张智博, 段艳平, 涂耀仁, 罗鹏程, 高峻 (3066)
香溪河流域微塑料的分布特征及其迁移规律分析	陈圣盛, 李卫明, 张坤, 熊伟唯, 张续同, 刘子健 (3077)
城市水体微塑料垂向分布下附着细菌群落结构和功能响应	陈玉芳, 闫振华, 张燕, 赵海洲 (3088)
2015 ~ 2020 年洪泽湖浮游植物群落结构及其环境影响因子	屈宁, 邓建明, 张祯, 蔡永久, 龚志军, 李明 (3097)
嘉兴南湖不同湖区浮游植物群落结构特征与环境因子关系	王雅雯, 李迎鹤, 张博, 郭云艳, 陈俊伊, 韩松 (3106)
近 20 年来广东省农业面源污染负荷时空变化与来源分析	葛小君, 黄斌, 袁再健, 王栋栋, 王泉泉, 陈佳村, 谢真越 (3118)
长江上游平原丘陵区农业非点源污染输出特征和驱动机制	谭少军, 刘洋, 朱小婕, 刘荷, 邵景安, 邓华 (3128)
高分辨率数据驱动的流域非点源污染输出风险评估方法	顾晶晶, 冶涛涛, 董甲平, 蒋云钟, 曹引, 赵红莉 (3140)
不同面源强度影响下城市河流溶解性有机质光谱特征变化	陈旭东, 高良敏 (3149)
生态沟渠-生物滞留池组合控制农村径流污染	石雷, 杨小丽, 吴青宇, 王亦铭, 徐佳莹 (3160)
不同水力扰动强度对老化 PSMPs 在泥水两相间迁移的影响	吴香香, 艾萍, 李大鹏 (3168)
北京市中心城区屋面径流污染特征及来源分析	席玥, 郭婧, 陶蕾, 田颖, 陈吉吉, 吴悦, 徐藤, 荆红卫, 刘保献 (3177)
不同植被绿色屋顶径流水质年际变化特征	章孙逊, 张守红, 葛德, 闫婧, 杨航, 王任重远, 魏良怡, 张成玉 (3187)
可见光促有机物诱导铁还原的多相类芬顿体系强化效能与机制	曹丝雨, 许路, 付权超, 金鑫, 石炬, 金鹏康 (3195)
4 种典型抗生素在反硝化体系中的去除特性	唐佳, 陈茜, 覃牧川, 唐溪, 唐崇俭 (3204)
农业废弃物基生物炭对水溶液中镉的吸附效果与机制	龚沛云, 孙丽娟, 宋科, 孙雅菲, 秦秦, 周斌, 薛永 (3211)
腐殖酸-重金属对 ANAMMOX 菌脱氮性能的影响及其动力学分析	李芸, 崔楠, 熊星星, 黄志远, 李泽兵, 王东亮, 李朝明, 许丹, 李军 (3221)
2000 ~ 2020 年西南地区植被 NDVI 对气候变化和人类活动响应特征	徐勇, 黄雯婷, 窦世卿, 郭振东, 李欣怡, 郑志威, 靖娟利 (3230)
黄河三角洲湿地不同植被类型下土壤营养元素空间分布及其生态学计量特征	孙德斌, 栗云召, 于君宝, 杨继松, 杜朝红, 孙丹丹, 凌越, 马元庆, 周迪, 王雪宏, 赵佳怡 (3241)
青藏高原东北部地区表层土壤中全氟化合物的分布特征及来源解析	温祥洁, 陈朝辉, 徐维新, 吴小娟, 郝云庆, 刘伟, 印红玲, 方淑红 (3253)
西南典型“退耕还林”区土地利用/覆被变化对土壤中硒及重金属含量的影响	刘永林, 刘属灵, 吴梅, 田兴磊, 刘双燕 (3262)
贵州普定喀斯特关键带土壤重金属形态特征及风险评价	张倩, 韩贵琳 (3269)
南丹盆地东部山区土壤锆分布特征及其影响因素分析	董秋瑶, 赖书雅, 宋超, 温皓天, 严明疆, 杨振京 (3278)
神农架川金丝猴栖息地重金属污染特征及风险评价	严佳莉, 于紫玲, 余辉亮, 向明灯, 王传华 (3288)
石灰泡石钝化后两种轮作模式对重度镉污染农田土壤的利用及修复	许璐, 周春海, 刘梅, 孔辉, 李元, 黄志红 (3299)
水稻磷盈亏对镉吸收转运的影响	谭文韬, 霍洋, 周航, 仇银燕, 曾鹏, 辜娇峰, 廖柏寒 (3308)
改良剂调控下水稻镉累积和土壤溶解性有机质光谱特征的响应	罗会龙, 陈娟, 张云慧, 袁贝, 杨宾, 张昊, 杜平 (3315)
土壤真菌群落对五台山亚高山草甸退化的响应	罗正明, 赫磊, 刘晋仙, 胡砚秋, 周妍英, 郑庆荣, 柴宝峰 (3328)
小麦与不同作物多样化轮作对土壤真菌群落的影响	靳海洋, 岳俊芹, 闫雅倩, 张德奇, 杨程, 张素瑜, 李向东, 邵运辉, 方保停, 王汉芳, 秦峰 (3338)
重庆农田土壤有机碳稳定性同位素空间分布特征	廖宇琴, 龙娟, 木志坚, 文首鑫, 李翠莲, 杨志敏, 赵秀兰 (3348)
长江三角洲 2018 年土壤 NO 排放特征	廖加强, 薛金, 王文锦, 朱永慧, 朱安生, 黄凌, 王杨君, 李莉 (3357)
基于多源数据的城市扩张中热环境演变及响应	梁建设, 白永平, 杨雪蕊, 高祖桥, 李玲蔚, 张春悦, 王倩 (3365)
《环境科学》征订启事 (3004) 《环境科学》征稿简则 (3047) 信息 (3252, 3298, 3327)	

我国地表水新烟碱类杀虫剂对水生生物安全的威胁

范丹丹, 刘红玲*, 杨柳燕*

(南京大学环境学院, 污染控制与资源化研究国家重点实验室, 南京 210023)

摘要: 针对我国新烟碱类杀虫剂 (NNIs) 使用量大且地表水中浓度逐渐上升的现状, 基于物种敏感度分布法, 利用危害商法和概率风险评价法评估了我国地表水中 NNIs 对淡水水生生物的单一和复合生态风险, 并对我国地表水质监管 NNIs 提出了目标建议值。结果表明: ① 单一化合物, 吡虫啉的急性危害最大, 吡虫啉和噻虫胺的慢性危害较大, 最敏感生物均为昆虫; ② 海南省是地表水 NNIs 浓度最高的地区, 急慢性危害最大; ③ 联合毒性的概率曲线表明, 5 种 NNIs 对 5% 淡水水生生物产生慢性联合毒性的概率高达 92.12%, 严重威胁我国水生生物的安全; ④ 基于物种敏感度分布曲线得到毒性参考值, 结合危害商和概率风险评价的结果, 建议我国保护水生生物安全的地表水质监管目标值分别为吡虫啉 $0.01 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、噻虫胺 $0.03 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、噻虫啉 $0.04 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、噻虫胺 $0.22 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和噻虫嗪 $0.24 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。总之, 我国地表水中 NNIs 浓度已经威胁到水生生物的安全, 必须加强监管。

关键词: 吡虫啉; 噻虫胺; 噻虫啉; 物种敏感度分布; 概率风险评价

中图分类号: X171.5 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)06-2987-09 DOI: 10.13227/j.hjks.202109064

Neonicotinoid Insecticides Threaten Surface Waters at the National Scale in China

FAN Dan-dan, LIU Hong-ling*, YANG Liu-yan*

(State Key Laboratory of Pollution Control and Resource Reuse, School of Environment, Nanjing University, Nanjing 210023, China)

Abstract: This study was conducted in response to the current situation in our country in which neonicotinoid pesticides (NNIs) are used in large quantities and their concentration in surface water is gradually increasing. Based on the species sensitivity distribution (SSD), the hazard quotient (HQ) and probabilistic risk assessment (PRA) were used to compare single and mixture risks of NNIs in the surface water in China. The target and recommended values of NNIs in China's surface water quality supervision were also presented. The results showed that: ① in the single acute hazard assessment, imidacloprid (IMI) was the most harmful insecticide, and in the single chronic hazard assessment, imidacloprid (IMI) and acetamiprid (ACE) were more harmful. Furthermore, insects were the most sensitive creatures. ② Hainan province was the region with the highest single acute and chronic hazard in the study area. ③ Based on the joint probability curves of five neonicotinoids, the probability in which 5% of species would be affected by long-term exposure was approximately 91.12%. Thus, the combined ecological risk of these five neonicotinoids cannot be ignored. ④ Based on the toxicity reference value from SSD and the combined results of HQ and PRA, the regulatory values of surface water quality in China were as follows: acetamiprid (ACE) $0.04 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, clothianidin (CLO) $0.22 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, imidacloprid (IMI) $0.01 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, thiacloprid (THI) $0.03 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, and thiamethoxam (THIA) $0.24 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$. In short, the concentration of NNIs in the surface water in China has threatened the safety of aquatic organisms, and its supervision must be improved.

Key words: imidacloprid; thiacloprid; acetamiprid; species sensitivity distribution; probabilistic risk assessment

中国作为农业大国, 2019 年我国的农作物总播种面积高达 $165\,931 \times 10^3 \text{ hm}^2$ ^[1]。连年耕作带来的农作物病虫害问题非常凸显, 以致杀虫剂的需求量越来越大, 其中新烟碱类杀虫剂 (neonicotinoid insecticides, NNIs) 的使用量迅速增长, 截至 2014 年, NNIs 的市场销售额约占全球农药市场总销售额的四分之一^[2]。中国在 NNIs 生产、消费和出口方面占世界领先地位, 其中生产量和出口量最大的是吡虫啉, 其年产量和出口量分别为 14 000 t 和 8 000 t^[3]。

NNIs 是一种烟碱型乙酰胆碱受体 (nicotinic acetylcholine receptors, nAChRs) 的激动剂^[4, 5], 会与有害昆虫体内的 nAChRs 结合, 表现出对昆虫的优先毒性和对脊椎动物的低毒性^[4, 6, 7], 从而达到良好的虫害防治效果。目前开展了单一 NNI 对陆生和哺乳动物危害研究, 如噻虫胺会抑制蜜蜂免疫系统, 降低幼虫和蜂王的存活率^[8], 还会对哺乳动物的生

殖器官和配子造成不利影响^[9]。然而, 由于 NNIs 具有广谱性和极好的水溶性, 可以通过地表径流不断进入到水生态系统中^[10], 威胁水体中非靶生物的安全。有广泛检出的吡虫啉、噻虫胺和噻虫嗪的 NNIs 混合物对蜉蝣若虫复合毒性研究, 发现混合物的联合毒性显著大于单一毒性作用^[11]。而水环境中的 NNIs 复合存在是否影响水生态系统的安全以及程度如何还未见报道, 生态风险评价是对环境中污染物产生危害的可能性和程度进行评估。因此开展 NNIs 单一和联合毒性的水生态的风险研究具有十分重要的现实意义。

本文选择水体中检出率较高、残留浓度较大的

收稿日期: 2021-09-08; 修订日期: 2021-10-26

基金项目: 国家自然科学基金项目 (22176095, 21677073); 国家水体污染控制与治理科技重大专项 (2018ZX07208001); 国家重点研发计划项目 (2018YFC1801505)

作者简介: 范丹丹 (1997 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为环境风险评估, E-mail: fand_d@163.com

* 通信作者, E-mail: hlliu@nju.edu.cn; E-mail: yangly@nju.edu.cn

5 种 NNIs 啉虫脒 (acetamiprid, ACE)、噻虫胺 (clothianidin, CLO)、吡虫啉 (imidacloprid, IMI)、噻虫啉 (thiacloprid, THI) 和噻虫嗪 (thiamethoxam, THIA) 为研究对象,以中国东中部地区为研究区域,基于物种敏感度分布法 (species sensitivity distribution, SSD),利用危害商法 (hazard quotient, HQ) 和概率风险评价法 (probabilistic risk assessment, PRA) 评估其单一和复合生态风险,并参考各个国家的水质标准值,提出保护水生生物安全的 NNIs 的水质管理目标建议值。

1 材料与方法

1.1 数据获取与筛选

NNIs 环境暴露数据获取途径为:以“Neonicotinoid”、“concentration”和“surface water”为关键词,分别检索 web of science (<http://apps.webofknowledge.com/>) 和中国知网 (<http://www.cnki.net/>),找出明确且同时报道 ACE、CLO、IMI、THI 和 THIA 这 5 种杀虫剂在中国地表水中浓度的研究并进行整理和分析^[12~16]。截止 2021 年 2 月,整理出 187 个研究样点的 935 条数据,覆盖了 13 个省行政区,主要分布于长江水系、珠江水系和东部河口河流,采样年份在 2016~2018 年之间。通过加和得到单一采样点 5 种 NNIs 的总和,将采样点按省行政区进行分类并取平均值,得到每个省行政区中 5 种 NNIs 的总环境暴露数据,NNIs 单位统一为 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

5 种 NNIs 的急性毒性数据来自美国环保署 (U. S. EPA) 的 ECOTOX 数据库 (<http://www.epa.gov/ecotox>) 和文献^[17~20]。急性毒性终点包括半数致死浓度 (LC_{50}) 或半数效应浓度 (EC_{50}),慢性毒性终点采用无观察效应浓度 (NOEC) 或最低可观察浓度 (LOEC)^[21~25]。毒性数据的筛选依据准确性、相关性和可靠性原则。具体如下:①1980~2021 年 2 月报道的毒性数据;②测试地点为实验室,测试环境为淡水;③测试 NNIs 农药纯度 $\geq 80\%$;④对于急性毒性数据,优先选择暴露时间为鱼类 96 h,无脊椎 (蠕类) 为 48 h,藻类为 24 h 的测试数据。对于慢性毒性数据,优先选择暴露时间为鱼类大于 14 d,无脊椎 (蠕类) 21 d,藻类 72 h 或 96 h 的测试数据^[17]。对同一个物种有多个毒性终点数据可用时,选择最敏感毒性终点数据;有多个数据可用于同一物种同一毒性终点时,取数据的几何平均值^[26]。将所有毒性数据单位统一为 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

1.2 SSD 构建方法

将筛选得到的毒性数据按从小到大顺序排列,

按照式(1)计算每个物种的累计概率^[27~29]:

$$P = (R_i - 0.5)/n \quad (1)$$

式中, P 为累计概率, R_i 为物种排序的秩, n 为样本数。

1.3 HC_5 的计算

采用 Log-Normal 分布拟合 SSD 曲线,对应 95% 物种受到保护时的污染物浓度为 HC_5 (hazard 5% of species concentration)^[26,30~34],并和最敏感生物的毒性数值进行比较以确定合理的毒性参考值 (toxicity reference value, TRV)。

1.4 生态风险评价

采用危害商法 (HQ) 和概率风险评价法 (PRA) 进行生态风险评价。

1.4.1 危害商法

危害商法通过计算自然水体中污染物暴露浓度与其毒性参考值 (TRV_i) 的比值,判断该污染物在环境中的危害,可以判断污染物风险。若 $\text{HQ} > 1$,则环境风险较高;若 $\text{HQ} < 1$,则环境风险较低^[35]。单一杀虫剂 HQ 值的计算见式(2)。

$$\text{HQ}_i = \frac{\text{exposure}}{\text{toxicity}} = \frac{\text{MEC}_i}{\text{TRV}_i} = \frac{\text{MEC}_i}{\text{HC}_5} \text{ 或 } \frac{\text{MEC}_i}{\text{PNEC}} \quad (2)$$

式中, MEC_i 为杀虫剂 i 的环境浓度; TRV_i 杀虫剂 i 的毒性参考值,一般采用 HC_5 值,若 HC_5 值无法保护所有已知生物,则采用 PNEC (predicted no effect concentration) 值,具体计算见式(3)^[26,36~38]:

$$\text{PNEC} = \text{HC}_5/A_F \quad (3)$$

式中, A_F 为评估因子,取 2~5^[26]。以不同杀虫剂最敏感水生生物的毒性数据为参考,确定 CLO 和 THIA 的评估因子为 2,IMI 的评估因子为 5,以保证 PNEC 值能保护所有已知生物。

根据本文收集的实际环境暴露浓度,可计算各行政地区中 5 种 NNIs 暴露浓度的最大值、中值和均值。选取最大暴露浓度和 $\text{TRV}_{i \text{ acute}}$ 值,利用公式(2)得到急性 HQ 值;选取中值暴露浓度和 $\text{TRV}_{i \text{ chronic}}$ 值,得到慢性 HQ 值,若行政地区中可用浓度数量 ≤ 2 ,则选用均值暴露浓度计算。

1.4.2 概率风险评价

利用收集到的环境暴露数据,得到 5 种 NNIs 的环境暴露浓度分布 (ECD),结合对应 SSD 曲线绘制出联合概率曲线 (JPC),计算水环境暴露浓度大于效应浓度的概率来判断风险的大小^[35,39,40]。曲线越靠近横纵坐标轴,表明该杀虫剂发生不利影响的可能性越小^[35]。

参照毒性当量的概念和原理,以发生最大不利影响的杀虫剂为参照物,将其余农药的环境暴露浓度利用公式(4)转化为该农药的当量浓度,研究混

合污染物的复合风险^[41]：

$$c_{\text{equ,tol}} = \sum_i^n \frac{HC_{50,\text{ref}}}{HC_{50,i}} \times c_i \tag{4}$$

式中， c_i 为第 i 种污染物的环境暴露浓度， $HC_{50,\text{ref}}$ 和 $HC_{50,i}$ 分别为水生生物 50% 受到参照化合物和第 i 种化合物危害的浓度。

2 结果与讨论

2.1 淡水环境 NNIs 污染现状

本文研究涉及省行政区的水环境 NNIs 污染现状和研究区域内各 NNIs 浓度分布区间如图 1 所示。

由图 1(a) 可知，5 种 NNIs 的总环境暴露浓度存在一定的空间分布差异性，其反映的水环境污染程度可分为 4 个等级。其中，水环境暴露浓度最高的省份为海南省（ $0.35 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ），其次是上海市（ $0.15 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）和广东省（ $0.11 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ），四川省（ $0.08 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）、湖北省（ $0.08 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）、江苏省（ $0.08 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）、河北省（ $0.07 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）、山东省（ $0.07 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）和福建省（ $0.06 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）位于第三等级，而后第四等级是浙江省（ $0.04 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）、重庆市（ $0.03 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）、辽宁省（ $0.02 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）和江西省（ $0.02 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ）。

$\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$).

海南省、上海市和广东省地表水中 NNIs 浓度均超过了 $0.10 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ，海南省全年的气温较高，雨量充沛，且多种植热带果树，为病虫害的高发区，因此海南省常常使用各种杀虫剂对果园进行喷洒以保证果树正常生长。其中 IMI 属于高温农药，其杀虫效果和温度呈正相关，且适用于绝大多数种植果树，包括热带果树^[42]，故海南省的杀虫剂更多依赖于 IMI，因此，地表水中 NNIs 浓度也相对较高；广东省的农业种植面积较大（ $4\,357.4 \times 10^3 \text{ hm}^2$ ），且 NNIs 的使用率较高；而上海市则是因为区域内流域面积较小，使得地表水中 NNIs 浓度较高^[15]。

由图 1(b) 可知，研究区域中 NNIs 以 IMI 为主，其次是 THIA、ACE 和 CLO，最少的是杀虫剂 THI。根据中国农药信息网可知，有效成分为 IMI 的农药可使用于 61 种农作物，有效成分为 THIA、ACE 和 CLO 的农药可分别使用于 49、31 和 25 种农作物，有效成分为 THI 的农药仅可作用于 17 种农作物。这些农作物在研究区域内均有种植，间接解释研究区域地表水 NNIs 杀虫剂残留浓度结构的变化。

2.2 SSD 曲线绘制

在 SSD Generator 中采用 Log-Normal 对收集到的毒性数据进行曲线拟合，得到 5 种 NNIs 的急慢性 SSD 曲线（图 2）。

由图 2(a) 可知，5 种 NNIs 的急性 HC_5 值从小到大依次为：IMI < THI < ACE < CLO < THIA。此外，从图 2(a) 中可以看出 SSD 曲线的左下方主要是昆虫，即昆虫对 5 种新烟碱类农药最敏感，因此政府应严格控制 5 种 NNIs 的短期暴露最大浓度，以最大程度保护杀虫剂喷洒期对非目标昆虫的安全。

由图 2(b) 可知，5 种 NNIs 的慢性 HC_5 值从小到大依次为：THI < ACE < IMI < CLO < THIA。其中，杀虫剂 CLO、IMI 和 THIA 均有物种的毒性数据小于对应的慢性 HC_5 值，即通过慢性 SSD 曲线拟合得到的慢性 HC_5 值无法保护所有已知毒性数据的淡水生物，需要选择合适的评估因子以得到可以保护所有已知淡水生物的毒性参考值。SSD 曲线的左下方绝大多数是昆虫，部分是底栖甲壳类和脊索动物，表明在慢性危害评估中，昆虫对 5 种 NNIs 十分敏感，部分底栖甲壳类和脊索动物对杀虫剂 IMI 也较为敏感，因此，应加强对 5 种 NNIs 长期暴露浓度的管控工作，以最大程度保护昆虫、底栖甲壳类动物和脊索动物的安全。

2.3 风险评价结果

2.3.1 危害商法评价

以 SSD 曲线得到的 HC_5 值为毒性参考值

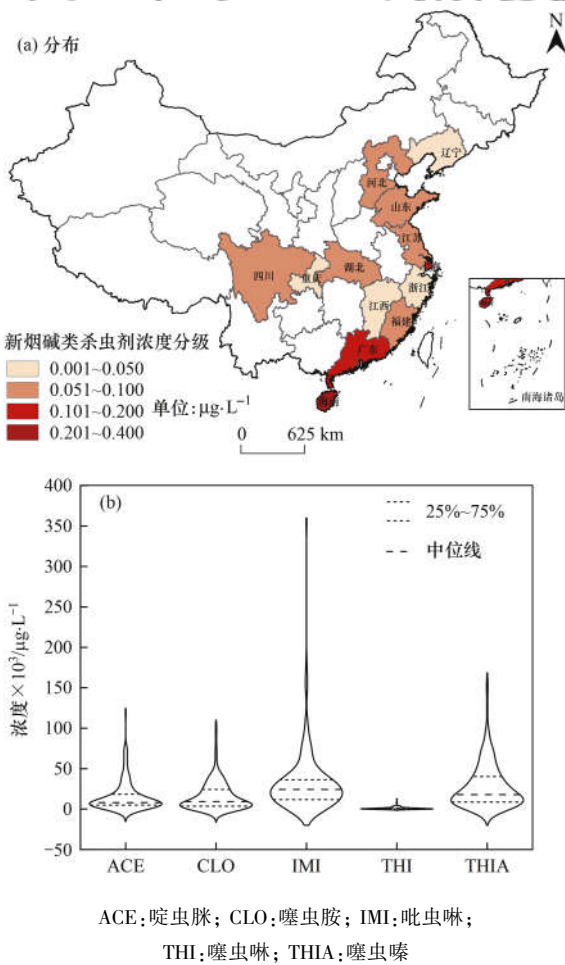


图1 我国地表水新烟碱类杀虫剂浓度分布和浓度范围

Fig. 1 Concentration distribution and range of NNIs in surface water

(TRV_i) 对 5 种 NNIs 进行急性和慢性危害评估, 其中 CLO、IMI 和 THIA 的慢性 HC_5 值无法保护目前

已知的所有生物, 因此分别选取 2 或 5 作为 3 种 NNIs 的慢性评估因子(A_F), 根据式(3), 计算 PNEC

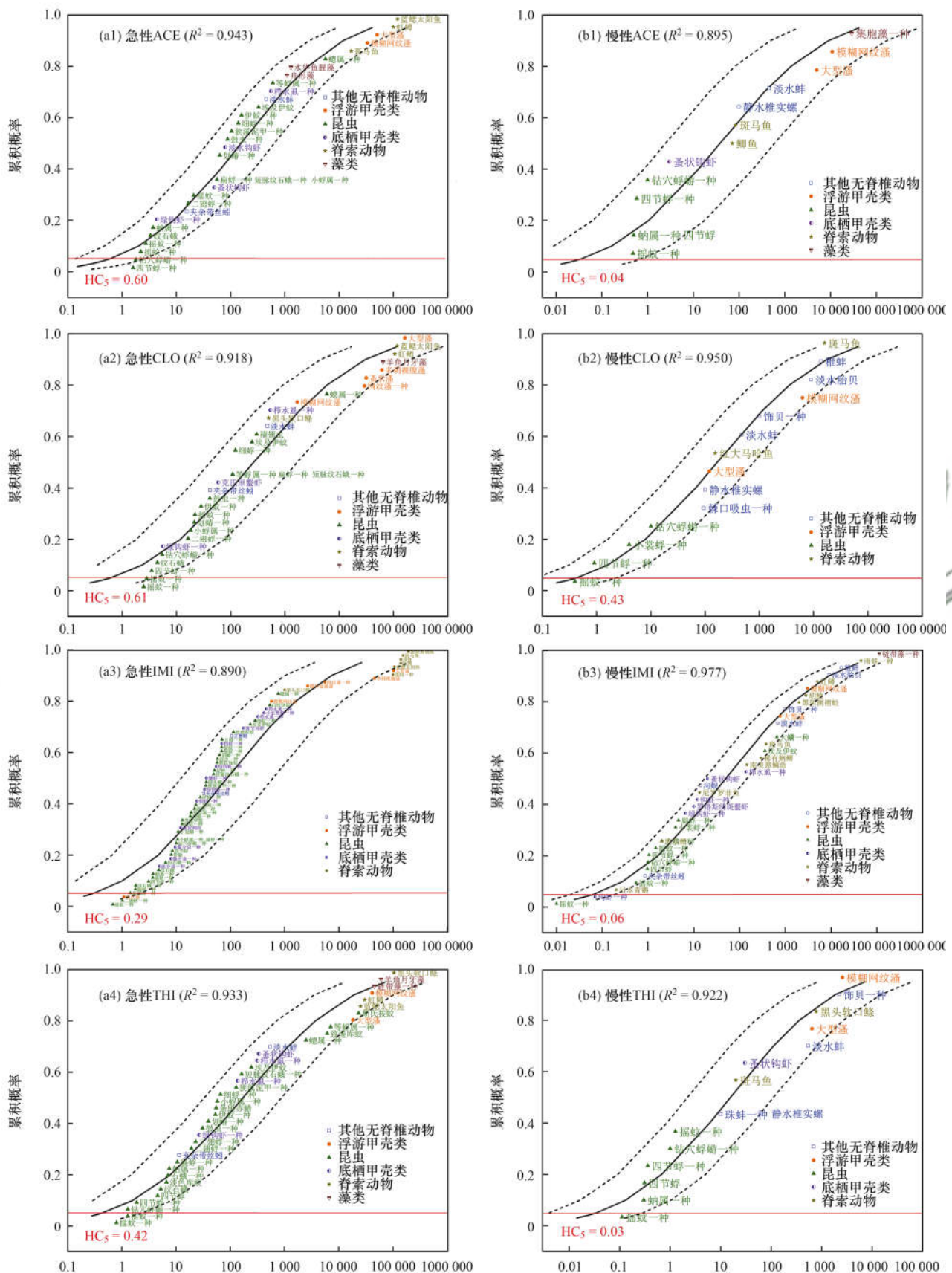
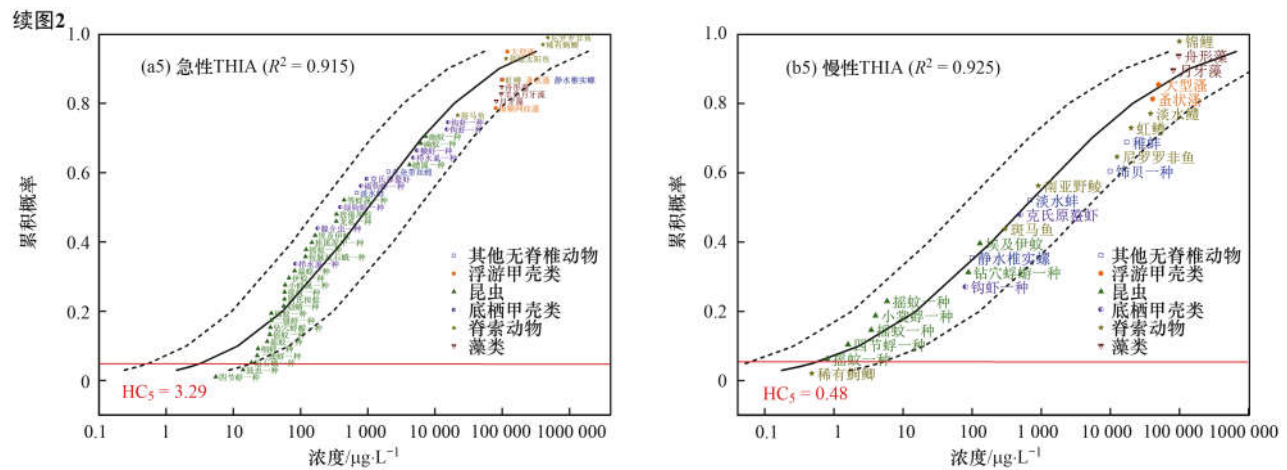


图2 5种新烟碱类杀虫剂的急性和慢性物种敏感度分布曲线

Fig. 2 Acute and chronic species sensitivity distributions of five neonicotinoids



值以替代慢性毒性参考值($\text{TRV}_{i\text{ chronic}}$),最终5种NNIs的急性毒性参考值($\text{TRV}_{i\text{ acute}}$)从小到大依次为:IMI($0.29\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)、THI($0.42\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)、ACE($0.60\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)、CLO($0.61\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)和THIA($3.29\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$); $\text{TRV}_{i\text{ chronic}}$ 值从小到大依次为:IMI($0.01\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)、THI($0.03\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)、ACE($0.04\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)、CLO($0.22\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)和THIA($0.24\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)。杀虫剂IMI的急慢性生态危害最大。

由表1可知,仅杀虫剂IMI的急性HQ值(1.224)大于1,存在较高的生物危害。在急性危害评估中,危害最大的杀虫剂为IMI,危害最高的地区

为海南省。由急性SSD曲线可知,昆虫对杀虫剂IMI最敏感,特别是摇蚊幼虫(*Chironomus dilutes*)。此外,杀虫剂IMI在11个行政地区的慢性HQ值和杀虫剂ACE在2个行政地区的慢性HQ值均大于1,都存在较高的环境危害。因此,在慢性危害评估中,危害最大的杀虫剂为IMI,其次是ACE。其中,杀虫剂IMI在海南省的危害最高($\text{HQ} = 21.628$),其余高危害地区随HQ值从大到小依次为:上海市(7.890)、山东省(3.658)、江苏省(3.090)、广东省(2.790)、福建省(2.304)、河北省(2.026)、湖北省(1.710)、重庆市(1.635)、四川省(1.203)和

表1 急性和慢性危害评估中风险商(HQ)预测值
Table 1 Predicted HQ values of neonicotinoids in acute and chronic risk assessment

地点	急慢性	ACE	CLO	IMI	THI	THIA
辽宁省	急性	0.056	0.008	0.032	0.002	0.003
	慢性	0.143	0.003	0.129	0.008	0.019
河北省	急性	0.021	0.116	0.134	0	0.002
	慢性	0.193	0.167	2.026	0	0.021
福建省	急性	0.122	0.011	0.251	0.008	0.005
	慢性	0.176	0.013	2.304	0.008	0.031
江苏省	急性	0.016	0.024	0.125	0.007	0.013
	慢性	0.142	0.037	3.090	0.053	0.130
江西省	急性	0.008	0.013	0.031	0	0.005
	慢性	0.049	0.014	0.426	0	0.038
山东省	急性	0.044	0.010	0.225	0	0.001
	慢性	0.648	0.013	3.658	0.003	0.007
上海市	急性	0.081	0.026	0.291	0.004	0.005
	慢性	1.148	0.037	7.890	0.028	0.050
浙江省	急性	0.039	0.010	0.115	0.001	0.004
	慢性	0.097	0.020	1.182	0.002	0.028
广东省	急性	0.129	0.169	0.621	0.030	0.044
	慢性	0.235	0.069	2.790	0.017	0.115
海南省	急性	0.197	0.016	1.224	0.009	0.029
	慢性	1.533	0.028	21.628	0.086	0.260
湖北省	急性	0.038	0.133	0.246	0.019	0.027
	慢性	0.175	0.066	1.710	0.086	0.068
四川省	急性	0.030	0.016	0.172	0.001	0.048
	慢性	0.120	0.029	1.203	0	0.097
重庆市	急性	0.014	0.051	0.108	0.005	0.004
	慢性	0.139	0.001	1.635	0.008	0.007

浙江省(1.182).杀虫剂 ACE 危害最高的地区也是海南省($HQ = 1.533$),其次是上海市($HQ = 1.148$).由慢性 SSD 曲线可知,昆虫、底栖甲壳动物和脊索动物对 IMI 均较为敏感,特别是摇蚊幼虫(*Chironomus dilutes*);同样,对杀虫剂 ACE 最为敏感的生物类群也是昆虫,特别是摇蚊(*Chironomus dilutes*).因此为保护海南省和上海市两地大多数昆虫,关注 IMI 的同时也要关注 ACE 的污染,避免生态环境恶化.

2.3.2 联合概率风险评价

根据 5 种 NNIs 的 ECDs 和急慢性 SSD 曲线分别绘制急慢性联合概率分布曲线,同时以杀虫剂 IMI 和 ACE 作为混合物急性 JPC 曲线和慢性 JPC 曲线的参照物,利用公式(4)将其余杀虫剂的实际浓度转化为这两种杀虫剂的当量浓度,结合 IMI 的急性 SSD 曲线和 ACE 的慢性 SSD 曲线,分析得到混合物的急慢性 JPCs 曲线(图 3).

由图 3(a)可知,5 种 NNIs 的急性 JPCs 曲线均靠近坐标轴,故其发生不利影响的可能性均较小.不利影响发生可能性最大的杀虫剂为 IMI.由图 3(b)可知,杀虫剂 CLO、THI 和 THIA 的慢性 JPCs 曲线离坐标轴的距离较近,而 ACE 的慢性 JPCs 曲线与坐标轴距离要大于 IMI,且远大于其余 3 种杀虫剂,ACE 是发生不利影响可能性最大的 NNIs 杀虫剂.

由图 3(c)可知,混合物的急性 JPC 曲线与坐标轴的距离要远小于慢性 JPC 曲线与坐标轴之间的距离,表明当水生生物持续暴露在 5 种 NNIs 混合物中时,其受混合物影响发生不利反应的可能性较大.此外,由混合物急性 JPC 曲线得到的 5% 生物受影响的概率较低(2.44%),与单一杀虫剂 IMI 得到的影响概率相似(3.68%),而由混合物慢性 JPC 曲线得到的 5% 生物受影响概率高达 92.12%,高于单一杀虫剂 ACE 得到的影响概率(50.61%),远高于其余杀虫剂得到的影响概率(IMI = 29.32%, THIA = 2.56%, THI = 1.95%, CLO = 1.29%),即 5 种 NNIs 的急性混合生态风险较小,而慢性生态毒性具有极强的联合作用,混合物的慢性生态风险不可忽视.

基于 SSD 曲线提出保护水生生物安全的急慢性目标值(表 2),与其他国家的标准值存在一定差异,这是因为我国和其他国家的地理环境不同且敏感种存在差异.啉虫脒和噻虫啉的慢性 HC_5 值可以保护目前已知的所有水生生物,因此建议保护水生生物长期安全的我国地表水质监管目标值分别为啉虫脒 $0.04 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和噻虫啉 0.03

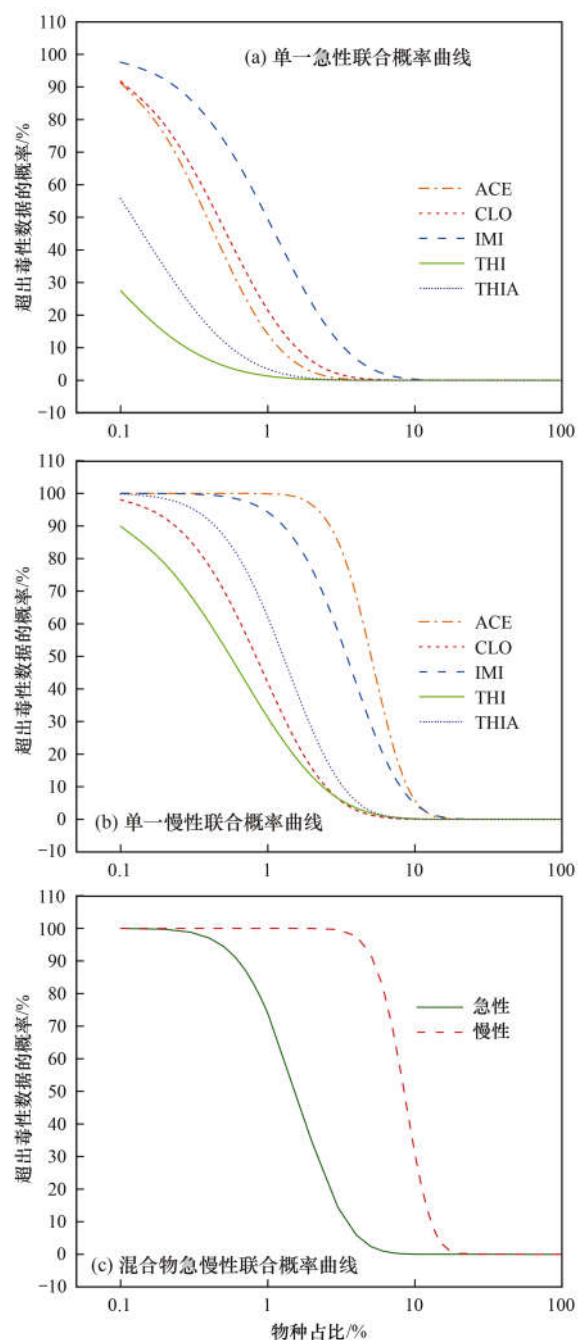


图 3 不同省份地表水中 5 种新烟碱类杀虫剂的单一急慢性联合概率曲线和混合物急慢性联合概率曲线

Fig. 3 Single acute and chronic joint probability curves and mixture joint probability curves of five neonicotinoids in surface water of different provinces

$\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$.噻虫胺、吡虫啉和噻虫嗪的慢性 HC_5 值无法保护目前已知的所有水生生物,故分别选取 2 或 5 作为 3 种 NNIs 的慢性评估因子(A_F),根据式(3)得到 PNEC 值,最终建议保护水生生物长期安全的我国地表水质监管目标值分别为噻虫胺 $0.22 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、吡虫啉 $0.01 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和噻虫嗪 $0.24 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$.这不仅为 5 种 NNIs 提供了新的水质基准参考值,也为我国水质标准制定提供了根据,具有巨大的现实意义.

表 2 不同地区和国家的 5 种新烟碱类杀虫剂水质标准¹⁾/μg·L⁻¹
Table 2 Water quality standards of five neonicotinoid insecticides in different countries/μg·L⁻¹

地区或国家	项目 ¹⁾	啉虫脒 (ACE)	噻虫胺 (CLO)	吡虫啉 (IMI)	噻虫啉 (THI)	噻虫嗪 (THIA)
欧盟	急性	0.5 ^[43]	0.13 ^[45]	0.3 ^[43]	1.57 ^[43]	2.8 ^[43]
荷兰	慢性				0.01 ^[46]	0.14 ^[46]
新西兰	急性			0.2 ^[44]		
	慢性			0.008 3 ^[44]		
瑞士	急性				0.08 ^[47]	1.4 ^[47]
	慢性				0.01 ^[47]	0.042 ^[47]
本研究建议目标值	急性	0.60	0.61	0.29	0.42	3.29
	慢性	0.04	0.22	0.01	0.03	0.24
毒性参考值	HC _{5 acute}	0.60	0.61	0.29	0.42	3.29
	HC _{5 chronic}	0.04	0.43	0.06	0.03	0.48
	TRV _{i acute}	0.60	0.61	0.29	0.42	3.29
	TRV _{i chronic}	0.04	0.22	0.01	0.03	0.24

1) HC_{5 acute} 和 HC_{5 chronic} 为本文基于 SSD 曲线得到的,而部分杀虫剂的 HC₅ 值无法保护所有生物,因此利用评估因子进行修正,得到 TRV_{i acute} 和 TRV_{i chronic} 的毒性参考值

3 结论

(1) 危害评估中,吡虫啉和啉虫脒对淡水生态系统生物发生慢性危害较大,危害最大的生物类型为摇蚊幼虫 (*Chironomus dilutes*); 海南省是急慢性危害最高的地区。

(2) 5 种 NNIs 的急性混合生态风险较小,而慢性混合生态毒性具有极强的联合作用,生态风险较大,5% 生物受影响概率高达 92.12%,严重影响绝大多数生物的安全。

(3) 要加强管控危害大的吡虫啉和啉虫脒,且要关注其余 NNIs 的暴露浓度,避免发生联合作用造成更大的生态风险。建议保护水生生物安全的中国地表水质监管目标值分别为啉虫脒 0.04 μg·L⁻¹、噻虫胺 0.22 μg·L⁻¹、吡虫啉 0.01 μg·L⁻¹、噻虫啉 0.03 μg·L⁻¹ 和噻虫嗪 0.24 μg·L⁻¹。

参考文献:

[1] 国家统计局. 中国统计年鉴 2020 [EB/OL]. <http://www.stats.gov.cn/tjsj/ndsj/2020/indexch.htm>, 2021-08-19.

[2] Bass C, Denholm I, Williamson M S, *et al.* The global status of insect resistance to neonicotinoid insecticides [J]. *Pesticide Biochemistry and Physiology*, 2015, **121**: 78-87.

[3] Shao X S, Liu Z W, Xu X Y, *et al.* Overall status of neonicotinoid insecticides in China: production, application and innovation [J]. *Journal of Pesticide Science*, 2013, **38**(1): 1-9.

[4] Goulson D. REVIEW: an overview of the environmental risks posed by neonicotinoid insecticides [J]. *Journal of Applied Ecology*, 2013, **50**(4): 977-987.

[5] Jeschke P, Nauen R, Beck M E. Nicotinic acetylcholine receptor agonists: a milestone for modern crop protection [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2013, **52**(36): 9464-9485.

[6] Jeschke P, Nauen R, Schindler M, *et al.* Overview of the status and global strategy for neonicotinoids [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2011, **59**(7): 2897-2908.

[7] Simon-Delso N, Amaral-Rogers V, Belzunces L P, *et al.*

Systemic insecticides (neonicotinoids and fipronil): trends, uses, mode of action and metabolites [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, **22**(1): 5-34.

[8] Di Prisco G, Cavaliere V, Annoscia D, *et al.* Neonicotinoid clothianidin adversely affects insect immunity and promotes replication of a viral pathogen in honey bees [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2013, **110**(46): 18466-18471.

[9] Bal R, Türk G, Yılmaz Ö, *et al.* Effects of clothianidin exposure on sperm quality, testicular apoptosis and fatty acid composition in developing male rats [J]. *Cell Biology and Toxicology*, 2012, **28**(3): 187-200.

[10] De Perre C, Murphy T M, Lydy M J. Fate and effects of clothianidin in fields using conservation practices [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2015, **34**(2): 258-265.

[11] Macaulay S J, Hageman K J, Piggott J J, *et al.* Imidacloprid dominates the combined toxicities of neonicotinoid mixtures to stream mayfly nymphs [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **761**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.143263.

[12] Yi X H, Zhang C, Liu H B, *et al.* Occurrence and distribution of neonicotinoid insecticides in surface water and sediment of the Guangzhou section of the Pearl River, South China [J]. *Environmental Pollution*, 2019, **251**: 892-900.

[13] Zhang C, Tian D, Yi X H, *et al.* Occurrence, distribution and seasonal variation of five neonicotinoid insecticides in surface water and sediment of the Pearl Rivers, South China [J]. *Chemosphere*, 2019, **217**: 437-446.

[14] 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.

[15] Chen Y C, Zang L, Shen G F, *et al.* Resolution of the ongoing challenge of estimating nonpoint source neonicotinoid pollution in the Yangtze River basin using a modified mass balance approach [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, **53**(5): 2539-2548.

[16] Wan Y J, Wang Y, Xia W, *et al.* Neonicotinoids in raw, finished, and tap water from Wuhan, Central China: assessment of human exposure potential [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **675**: 513-519.

[17] Morrissey C A, Mineau P, Devries J H, *et al.* Neonicotinoid

- contamination of global surface waters and associated risk to aquatic invertebrates; a review[J]. *Environment International*, 2015, **74**: 291-303.
- [18] Raby M, Nowierski M, Perlov D, *et al.* Acute toxicity of 6 neonicotinoid insecticides to freshwater invertebrates [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2018, **37**(5): 1430-1445.
- [19] Hook S E, Doan H, Gonzago D, *et al.* The impacts of modern-use pesticides on shrimp aquaculture: an assessment for north eastern Australia[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, **148**: 770-780.
- [20] Finnegan M C, Baxter L R, Maul J D, *et al.* Comprehensive characterization of the acute and chronic toxicity of the neonicotinoid insecticide thiamethoxam to a suite of aquatic primary producers, invertebrates, and fish[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2017, **36**(10): 2838-2848.
- [21] 孟伟, 吴丰昌. 水质基准的理论与方法学导论[M]. 北京: 科学出版社, 2010.
- [22] 李会仙, 吴丰昌, 陈艳卿, 等. 我国水质标准与国外水质标准/基准的对比分析[J]. *中国给水排水*, 2012, **28**(8): 15-18.
- Li H X, Wu F C, Chen Y Q, *et al.* Comparative analysis on Chinese water quality standards and foreign water quality standards/criteria[J]. *China Water & Wastewater*, 2012, **28**(8): 15-18.
- [23] 冯承莲, 吴丰昌, 赵晓丽, 等. 水质基准研究与进展[J]. *中国科学: 地球科学*, 2012, **42**(5): 646-656.
- Feng C L, Wu F C, Zhao X L, *et al.* Water quality criteria research and progress[J]. *Science China Earth Science*, 2012, **55**(6): 882-891.
- [24] Wu F C, Meng W, Zhao X L, *et al.* China embarking on development of its own national water quality criteria system[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(21): 7992-7993.
- [25] Jin X W, Wang Y Y, Giesy J P, *et al.* Development of aquatic life criteria in China: viewpoint on the challenge [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, **21**(1): 61-66.
- [26] Stephan C E, Mount D I, Hansen D J, *et al.* Guidelines for deriving numerical national water quality criteria for the protection of aquatic organisms and their uses[R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 1985.
- [27] 陈心悦, 张彦峰, 沈兆爽, 等. 中国七大水系淡水沉积物中林丹(γ -HCH)的生态风险评估[J]. *生态毒理学报*, 2018, **13**(3): 103-111.
- Chen X Y, Zhang Y F, Shen Z S, *et al.* Ecological risk assessment of γ -HCH for freshwater sediment of seven major river systems in China[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2018, **13**(3): 103-111.
- [28] 刘建梅, 王蕾, 刘济宁, 等. 微宇宙技术和物种敏感度分布曲线法评估铜离子生态危害对比研究[J]. *生态毒理学报*, 2015, **10**(4): 34-46.
- Liu J M, Wang L, Liu J N, *et al.* A microcosm study compared to the species sensitivity distribution approach: a case study with the copper ion[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2015, **10**(4): 34-46.
- [29] 孙雪华, 孙成, 刘红玲. 考虑物种权重校验保护太湖水生生物的铅基准[J]. *环境化学*, 2020, **39**(6): 1578-1589.
- Sun X H, Sun C, Liu H L. Weighted species sensitivity distribution method to derive site-specific quality criteria of lead for protection of aquatic life in Tai Lake[J]. *Environmental Chemistry*, 2020, **39**(6): 1578-1589.
- [30] Wang B, Yu G, Huang J, *et al.* Development of species sensitivity distributions and estimation of HC₅ of organochlorine pesticides with five statistical approaches [J]. *Ecotoxicology*, 2008, **17**(8): 716-724.
- [31] 王印, 王军军, 秦宁, 等. 应用物种敏感性分布评估 DDT 和林丹对淡水生物的生态风险[J]. *环境科学学报*, 2009, **29**(11): 2407-2414.
- Wang Y, Wang J J, Qin N, *et al.* Assessing ecological risks of DDT and lindane to freshwater organisms by species sensitivity distributions [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2009, **29**(11): 2407-2414.
- [32] 杜建国, 赵佳懿, 陈彬, 等. 应用物种敏感性分布评估中国近海和福建主要海湾水体重金属生态风险[J]. *生态毒理学报*, 2013, **8**(4): 554-560.
- Du J G, Zhao J Y, Chen B, *et al.* Assessing ecological risks of heavy metals to marine organisms in Chinese offshore and Fujian's main bays by species sensitivity distributions[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2013, **8**(4): 554-560.
- [33] 陈锦灿, 方超, 郑榕辉, 等. 应用物种敏感性分布评估微(纳米)塑料对水生生物的生态风险[J]. *生态毒理学报*, 2020, **15**(1): 242-255.
- Chen J C, Fang C, Zheng R H, *et al.* Assessing ecological risks of micro (nano) plastics to aquatic organisms using species sensitivity distributions [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2020, **15**(1): 242-255.
- [34] 赵芊渊, 侯俊, 王超, 等. 应用概率物种敏感度分布法研究太湖重金属水生生物水质基准[J]. *生态毒理学报*, 2015, **10**(6): 121-128.
- Zhao Q Y, Hou J, Wang C, *et al.* Deriving aquatic water quality criteria for heavy metals in Taihu Lake by probabilistic species sensitivity distribution [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2015, **10**(6): 121-128.
- [35] Solomon K, Giesy J, Jones P. Probabilistic risk assessment of agrochemicals in the environment[J]. *Crop Protection*, 2000, **19**(8-10): 649-655.
- [36] 孙甜甜, 田永静, 赵炜, 等. 太湖流域苏州城区不同用地类型降雨径流中重金属的生态风险评价[J]. *湖泊科学*, 2020, **32**(6): 1620-1631.
- Sun T T, Tian Y J, Zhao W, *et al.* Ecological risk assessment of heavy metals in rainfall runoff of different land use types in Suzhou of Taihu basin[J]. *Journal of Lake Sciences*, 2020, **32**(6): 1620-1631.
- [37] 孙乾航, 郑欣, 闫振广, 等. 淡水环境中短链氯化石蜡的预测无效应浓度及生态风险评估[J]. *生态毒理学报*, 2020, **15**(1): 256-264.
- Sun Q H, Zheng X, Yan Z G, *et al.* Predicted no effect concentration and ecological risk assessment of SCCPs in freshwater environments [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2020, **15**(1): 256-264.
- [38] 张家玮, 齐观景, 赵昊铎, 等. 基于物种敏感性分布评价长三角地区地表水壬基酚生态风险[J]. *生态毒理学报*, 2020, **15**(3): 134-148.
- Zhang J W, Qi G J, Zhao H D, *et al.* Ecological risk assessment of nonylphenol in surface waters of the Yangtze River delta based on species sensitivity distribution model [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2020, **15**(3): 134-148.
- [39] Hela D G, Lambropoulou D A, Konstantinou I K, *et al.* Environmental monitoring and ecological risk assessment for pesticide contamination and effects in Lake Pamvotis, northwestern Greece [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2005, **24**(6): 1548-1556.

- [40] Zolezzi M, Cattaneo C, Tarazona J V. Probabilistic ecological risk assessment of 1,2,4-trichlorobenzene at a former industrial contaminated site [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, **39**(9): 2920-2926.
- [41] 刘帆, 孔昊玥, 刘红玲. 基于权重敏感度分布研究太湖有机磷农药单一和复合风险[J]. *生态毒理学报*, 2020, **15**(2): 130-140.
- Liu F, Kong H Y, Liu H L. Study on risk of organophosphate pesticides mixture in Tai Lake based on weight species sensitivity distribution[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2020, **15**(2): 130-140.
- [42] 中华人民共和国农业农村部农药检定所. 中国农药信息网 [EB/OL]. <http://www.chinapesticide.org.cn/yxftozw.jhtml>, 2021-08-19.
- [43] Stehle S, Schulz R. Agricultural insecticides threaten surface waters at the global scale [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2015, **112**(18): 5750-5755.
- [44] Smit C E, Posthuma-Doodeman C J A M, Van Vlaardingen P L A, *et al.* Ecotoxicity of imidacloprid to aquatic organisms: derivation of water quality standards for peak and long-term exposure [J]. *Human and Ecological Risk Assessment: An International Journal*, 2015, **21**(6): 1608-1630.
- [45] European Union. Directive 98/8/EC concerning the placing of biocidal products on the market Inclusion of active substances in annex I to directive 98/8/EC assessment report clothianidin product-type 8 (wood preservative) [R]. Europe: European Union, 2007.
- [46] Netherlands National Institute for Public Health and the Environment. Search system risks of substances [EB/OL]. <https://rvszoekstysteem.rivm.nl/Stoffen>, 2021-03-24.
- [47] Ecotox Centre. Quality criteria proposals Ecotox Centre [EB/OL]. <http://www.oekotoxzentrum.ch/expertenservice/qualitaetskriterien/vorschlaege/index>, 2021-03-24.



CONTENTS

Impacts of Changes in Meteorological Conditions During COVID-19 Lockdown on PM _{2.5} Concentrations over the Jing-Jin-Ji Region	QIU Yu-lu, CHEN Lei, ZHU Jia, <i>et al.</i> (2831)
Influence of COVID-19 Prevention and Control Measures on PM _{2.5} Concentration, Particle Size Distribution, Chemical Composition, and Source in Zhengzhou, China	 HUANG Bing-yi, WANG Shen-bo, HE Bing, <i>et al.</i> (2840)
Concentration Variation and Source Analysis of Metal Elements in PM _{2.5} During COVID-19 Control in Suzhou	MIAO Qing, YANG Qian, WU Ye-zheng, <i>et al.</i> (2851)
Changes in Carbonaceous Aerosol in the Northern Suburbs of Nanjing from 2015 to 2019	XIE Tian, CAO Fang, ZHANG Yan-lin, <i>et al.</i> (2858)
Source Apportionment of PM _{2.5} Based on Hybrid Chemical Transport and Receptor Model in Chongqing	PENG Chao, LI Zhen-liang, CAO Yun-qing, <i>et al.</i> (2867)
Analysis on the Characteristics of Oxidation Potential and Influence Sources of PM _{2.5} in Baoding City in Winter	WU Ji-yan, YANG Chi, ZAHNG Chun-yan, <i>et al.</i> (2878)
Pollution Characteristics and Sources of Water-soluble Organic Nitrogen in PM _{2.5} in Jiangbei New Area, Nanjing	GUAN Lu, DING Cheng, ZHANG Yu-xiu, <i>et al.</i> (2888)
Organic Aerosols and Source Analysis of Fine Particles in the Background of Shiwanda Mountain, Guangxi	XING Jia-li, CAO Fang, WANG Qian, <i>et al.</i> (2895)
Comparison of Regional Transportation and Transformation Models of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Research on Key Influencing Factors: Take the Beijing-Tianjin-Hebei Region as Example	ZHANG Xin-lu, LIU Shi-jie, HAN Mei-li, <i>et al.</i> (2906)
Exploring Formation of Ozone in Typical Cities in Beijing-Tianjin-Hebei Region Using Process Analysis	TANG Ying-xiao, YAO Qing, CAI Zi-ying, <i>et al.</i> (2917)
Characteristics and Meteorological Factors of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Tianjin	XIAO Zhi-mei, LI Yuan, KONG Jun, <i>et al.</i> (2928)
Spatio-temporal Characteristics of Air Quality and Influencing Factors in Shandong Province from 2016 to 2020	ZHOU Meng-ge, YANG Yi, SUN Yuan, <i>et al.</i> (2937)
Trend Changes in Ozone Pollution and Sensitivity Analysis of Ozone in Henan Province	YAN Yang-yang, YIN Sha-sha, HE Qin, <i>et al.</i> (2947)
Effects of Tropical Cyclones on Ozone Pollution in the Pearl River Delta in Autumn	ZHAO Wei, LÜ Meng-yao, LU Qing, <i>et al.</i> (2957)
Real-time Composition and Sources of VOCs in Summer in Wuhan	SU Wei-feng, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, <i>et al.</i> (2966)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Summer in Yuncheng City	WEN Xiao-yu, ZHAO Wen-ting, LUO Shu-zhen, <i>et al.</i> (2979)
Neonicotinoid Insecticides Threaten Surface Waters at the National Scale in China	FAN Dan-dan, LIU Hong-ling, YANG Liu-yan (2987)
Spatiotemporal Distribution and Risk Assessment of Pharmaceuticals in Typical Drinking Water Sources in the Middle Reaches of the Yangtze River	 WU Jun-mei, WEI Lin, PENG Jing-qian, <i>et al.</i> (2996)
Pollution Characteristics and Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Underground and Surface Drinking Water Sources in Northeast Inner Mongolia	 ZHANG Kun-feng, CHANG Sheng, FU Qing, <i>et al.</i> (3005)
Impact of Land Use Types at Different Scales on Surface Water Environment Quality and Its Driving Mechanism	SONG Jing-wen, ZHANG Xue-xia, JIANG Dong-yang, <i>et al.</i> (3016)
Shallow Groundwater Around Plateau Lakes: Spatiotemporal Distribution of Nitrogen and Its Driving Factors	LI Gui-fang, YANG Heng, YE Yuan-hang, <i>et al.</i> (3027)
Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Lake Qinghai	ZHANG Ya-ran, CHE Fei-fei, FU Zheng-hui, <i>et al.</i> (3037)
Analysis of Heavy Metal Pollution Characteristics and Potential Ecological Risks of Surface Sediments in Dongjiang Lake	ZHAO Xiao-liang, LI Xiang, LU Hong-bin, <i>et al.</i> (3048)
Kinetic Release Characteristics of Organic Phosphorus of Sediment-water and Water Quality Risks	LIU Zhe-zhe, NI Zhao-kui, LIU Si-ru, <i>et al.</i> (3058)
Distribution Characteristics, Source Analysis, and Pollution Evaluation of Organic Matter in Surface Sediments of Qingpu District, Yangtze River Delta Integration Demonstration Area	 ZHANG Zhi-bo, DUAN Yan-ping, TU Yao-jen, <i>et al.</i> (3066)
Distribution Characteristics of Microplastics and Their Migration Patterns in Xiangxi River Basin	CHEN Sheng-sheng, LI Wei-ming, ZHANG Kun, <i>et al.</i> (3077)
Community Structure and Microbial Function Responses of Biofilms Colonizing on Microplastics with Vertical Distribution in Urban Water	 CHEN Yu-fang, YAN Zhen-hua, ZHANG Yan, <i>et al.</i> (3088)
Community Structure of Phytoplankton and Environmental Impact Factors in Lake Hongze from 2015 to 2020	QU Ning, DENG Jian-ming, ZHANG Zhen, <i>et al.</i> (3097)
Structural Characteristics of Zooplankton and Phytoplankton Communities and Its Relationship with Environmental Factors in Different Regions of Nanhu Lake in Jiaxing City	 WANG Ya-wen, LI Ying-he, ZHANG Bo, <i>et al.</i> (3106)
Temporal and Spatial Variation Characteristics and Source Analysis of Agricultural Non-point Source Pollution Load in Guangdong During the Past 20 Years	 GE Xiao-jun, HUANG Bin, YUAN Zai-jian, <i>et al.</i> (3118)
Output Characteristics and Driving Mechanism of Agricultural Non-point Source (AGNPS) Pollutant in Plain and Valley Region of Upper Yangtze River, China	 TAN Shao-jun, LIU Yang, ZHU Xiao-jie, <i>et al.</i> (3128)
Risk Assessment Method of Non-point Source Pollution Output for Watershed Using High Resolution Data	GU Jing-jing, YE Yun-tao, DONG Jia-ping, <i>et al.</i> (3140)
Spectral Characteristics Change in Dissolved Organic Matter in Urban River Under the Influences of Different Intensities of Non-point Source Pollution	CHEN Xu-dong, GAO Liang-min (3149)
Combination of Ecological Ditch and Bioretention Pond to Control Rural Runoff Pollution	SHI Lei, YANG Xiao-li, WU Qing-yu, <i>et al.</i> (3160)
Influence of Different Hydraulic Disturbance Intensities on the Migration of Aged PSMPs Between Sediment and Water	WU Xiang-xiang, AI Ping, LI Da-peng (3168)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of Rainfall Runoff from Roofs in the Central District of Beijing	XI Yue, GUO Jing, TAO Lei, TIAN Ying, <i>et al.</i> (3177)
Inter-annual Changes in Runoff Quality from Green Roofs with Different Vegetation	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, GE De, <i>et al.</i> (3187)
Effectivity of Multiphase Fenton-like System of Iron Reduction Induced by Bisphenol A Authigenic Photoelectron	CAO Si-yu, XU Lu, FU Quan-chao, <i>et al.</i> (3195)
Removal Characteristics of Four Typical Antibiotics in Denitrification System	TANG Jia, CHEN Xi, QIN Mu-chuan, <i>et al.</i> (3204)
Adsorption Capacity and Mechanism of Biochar Derived from Typical Agricultural Wastes for Cadmium in Aqueous Solutions	GONG Pei-yun, SUN Li-juan, SONG Ke, <i>et al.</i> (3211)
Effect of Humic Acid-Heavy Metals on the Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Bacteria and Its Kinetic Analysis	LI Yun, CUI Nan, XIONG Xing-xing, <i>et al.</i> (3221)
Responding Mechanism of Vegetation Cover to Climate Change and Human Activities in Southwest China from 2000 to 2020	XU Yong, HUANG Wen-ting, DOU Shi-qing, <i>et al.</i> (3230)
Spatial Distribution and Eco-stoichiometric Characteristics of Soil Nutrient Elements Under Different Vegetation Types in the Yellow River Delta Wetland	 SUN De-bin, LI Yun-zhao, YU Jun-bao, <i>et al.</i> (3241)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Perfluoroalkyl Substances in Surface Soils of the Northeast Tibetan Plateau	 WEN Xiang-jie, CHEN Zhao-hui, XU Wei-xin, <i>et al.</i> (3253)
Effect of Land Use/Land Cover Change on the Concentration of Se and Heavy Metals in Soils from a "Return Cropland to Forest" Area, Southwest China	 LIU Yong-lin, LIU Shu-ling, WU Mei, <i>et al.</i> (3262)
Speciation Characteristics and Risk Assessment of Soil Heavy Metals from Puding Karst Critical Zone, Guizhou Province	 ZHANG Qian, HAH Gui-lin (3269)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Germanium in Soil in the Eastern Mountainous Area of the Nanyang Basin	DONG Qiu-yao, LAI Shu-ya, SONG Chao, <i>et al.</i> (3278)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Risk Assessment of Golden Snub-nosed Monkey (<i>Rhinopithecus roxellana</i>) Habitat in Shennongjia Mountains	 YAN Jia-li, YU Zi-ling, YU Hui-liang, <i>et al.</i> (3288)
Utilization and Remediation of Heavily Cadmium-Contaminated Agricultural Soils by Two Crop Rotation Patterns After Lime and Sepiolite Passivation	 XU Lu, ZHOU Chun-hai, LIU Mei, <i>et al.</i> (3299)
Effects of Phosphorus Sufficiency and Deficiency on Cadmium Uptake and Transportation by Rice	TAN Wen-tao, HUO Yang, ZHOU Hang, <i>et al.</i> (3308)
Responses of Cd Accumulation in Rice and Spectral Characteristics of Soil Dissolved Organic Matter Regulated by Soil Amendments	LUO Hui-long, CHEN Juan, ZHANG Yun-hui, <i>et al.</i> (3315)
Responses of Soil Fungal Communities to Subalpine Meadow Degradation in Mount Wutai	LUO Zheng-ming, HE Lei, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (3328)
Response of Soil Fungal Communities in Diversified Rotations of Wheat and Different Crops	JIN Hai-yang, YUE Jun-qin, YAN Ya-qian, <i>et al.</i> (3338)
Spatial Characterization of Stable Isotope Composition of Organic Carbon from Farmland Soils in Chongqing	LIAO Yu-qin, LONG Juan, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (3348)
Characteristics of Soil NO Emissions in the Yangtze River Delta Region for Year 2018	LIAO Jia-qiang, XUE Jin, WANG Wen-jin, <i>et al.</i> (3357)
Thermal Environment Evolution and Response Mechanism of Urban Sprawl Based on Multi-source Data	LIANG Jian-she, BAI Yong-ping, YANG Xue-di, <i>et al.</i> (3365)